

Объединенный эколого-технологический
и научно-исследовательский центр
по обезвреживанию РАО и охране
окружающей среды (ФГУП «РАДОН»)

ТРУДЫ

**первой научно-практической
конференции «Охрана окружающей
среды и обращение с радиоактивными
отходами научно-промышленных
центров» ФГУП «РАДОН»**

г. Сергиев Посад, 2019
24-26 апреля 2019 г.



ПРЕДПРИЯТИЕ
ГОСКОРПОРАЦИИ
«РОСАТОМ»

Объединенный эколого-технологический
и научно-исследовательский центр по обезвреживанию РАО
и охране окружающей среды (ФГУП «РАДОН»)

ТРУДЫ

**Первой научно-практической конференции
«Охрана окружающей среды и обращение
с радиоактивными отходами
научно-промышленных центров»**

ФГУП «РАДОН»

Охрана окружающей среды и обращение с радиоактивными отходами научно-промышленных центров: Труды Первой научно-практической конференции, 24-26 апреля 2019 г. / Под общей редакцией профессора Е.А. Ваниной; М.: Изд-во ООО «Все для Вас Подмосковье», 2019 - 116 с: ил. 48, табл. 25.

ISBN 978-5-9976-0125-6

Рецензенты:

Баринов А.С., кандидат технических наук
Воронов С.И., доктор биологических наук, профессор

В сборнике трудов представлены основные результаты научно-практической конференции ФГУП «РАДОН» в области разработки и усовершенствования способов переработки твердых и жидких радиоактивных отходов, реабилитации территорий, хранения радиоактивных отходов, обеспечения безопасности хранилищ радиоактивных отходов, радиологического мониторинга и контроля. Сборник предназначен для специалистов в области обращения с радиоактивными отходами и охраны окружающей среды.

Редакционная коллегия:

Стефановский С.В., доктор химических наук, профессор,
Цейтин К.Ф., доктор технических наук, профессор,
Савкин А. Е., кандидат технических наук,
Карлина О.К., кандидат химических наук

ISBN 978-5-9976-0125-6

© ФГУП «РАДОН», 19.04.2019

Содержание

6

Архивный фонд ФГУП «РАДОН»: проблемы научного использования и реконструкции.

Пархоменко И.А.

Твердые и жидкие радиоактивные отходы

12

Переработка жидких радиоактивных отходов, накопленных в Грузии.

Савкин А.Е., Карлин Ю.В.

19

Новые стекла для захоронения ВАО и актинидных отходов.

Стефановский С.В.

35

Проблемы обращения с тритийсодержащими водными отходами.

Магомедбеков Э.П., Растунова И.Л.

42

Оптимизация технологического процесса концентрирования ЖРО на вакуумной выпарной установке «ЭКОПРИМА 4000-К».

Павлова Г.Ю., Сластенников Ю.Т., Волков Е.С.

49

Оптимальные составы полимерных компаундов для включения отработавших ионообменных смол.

Осташкина Е.Е., Павлова Г.Ю., Савкин А.Е.

Хранение и захоронение радиоактивных отходов

57

Применение методов статистического анализа для определения миграции радионуклидов в хранилищах РАО приповерхностного типа.

Веселова Е.С.

65

Модификация грунтов приконтурной зоны хранилищ приповерхностного типа.

Ильёв А.А.

Радиоэкологический мониторинг и радиационный контроль

73

Радиоэкологический мониторинг Московского региона.

Цейтин К.Ф., Пташкин А.Г.

78

Применение интегральных методов для радиационного контроля детских образовательных учреждений.

Закотеев Ю.А.

85

Техногенное радиоактивное загрязнение территории города Москвы.

Охрименко С.Е., Алехнович А.В., Акопова Н.А., Ермолина Е.П., Перцов В. А., Дружинина Ю.В., Ванина Е.А.

91

Исследование миграции радионуклидов во вмещающих породах хранилищ РАО и водных экосистемах санитарно-защитной зоны.

Лебедева О.М.

Вывод из эксплуатации ЯРОО

98

Дезактивация радиоактивно загрязненного металла с использованием совмещенного ультразвукового электрохимического метода.

Доильницын В.А., Акатов А.А., Лебедев Н.М., Васильев А.П.

105

Процедура ВЭ ЯРОО: 6+ шагов практической реализации.

Ильин В.А.

Архивный фонд ФГУП «РАДОН»



УДК 930.253:930.255

Архивный фонд ФГУП «РАДОН»: проблемы научного использования и реконструкции

Пархоменко И.А.

ФГУП «РАДОН»

e-mail: IAParkhomenko@radon.ru

В статье изучены проблемы научного использования и реконструкции архивного фонда предприятия. В рамках данного исследования автором впервые проанализирован состав документов архивного фонда предприятия, выявлена и устранена ошибка фондирования, установлена корневая причина возникающих проблем при научном использовании архивного фонда.

Ключевые слова: архивный фонд, архивная опись, архивная реконструкция, комплектование, номенклатура дел

Archive fund of RADON FSUE: problems of scientific use and reconstruction

Parkhomenko I.A.

RADON FSUE

e-mail: IAParkhomenko@radon.ru

The article are studied the problems of scientific use and reconstruction of the archive of the enterprise. In the framework of this study, the author has analyzed for the first time the composition of the documents of the archival fund of the enterprise. It was identified and eliminated the funding error. The root cause of the problems with scientific use of the archival fund is established.

Keywords: archival fund, archive inventory, archival reconstruction, acquisition, nomenclature of cases

Исследования по реконструкции архивных фондов информируют научное сообщество о наличии первоисточников по определенной тематике в форме аналитического текста или архивного справочника.

Степень научной разработанности темы и методические вопросы «архивной реконструкции» широко представлены в научных докладах, статьях, выступлениях, аналитических обзорах.

В работах Лаптевой Т.Н. представлен глубокий историографический анализ по тематике «архивной реконструкции» [7, с. 8-10]. Автором проведена реконструкция раздробленного архива Флоровского А.В. между фондами в Славянской библиотеке в Праге и в Архиве РАН в Москве. Термин «архивная реконструкция» определяется Лаптевой Т.Н. в новом значении и подразумевает научное исследование в области архивоведения, направленное на выявление, изучение состава и содержания нескольких фондов одного фондообразователя без изменения границ фондирования и физического перемещения документов. Определение понятия «реконструкция архивного фонда» приводится в Словаре архивной терминологии социалистических стран в значении именно практического физического воссоединения в одном архиве частей раздробленного фонда [7, с. 152].

Обращение к теме научного использования и реконструкции архивного фонда ФГУП «РАДОН» предпринимается впервые.

Актуальность выбранной темы подтверждается степенью ее востребованности, так как в ссылок на неопубликованную часть документов предприятия в научных работах должен применяться архивный шифр. Библиографическими ссылками в научном исследовании должны сопровождаться все опубликованные и неопубликованные документы на любых носителях, являясь частью справочного аппарата исследования и достаточные для идентификации, поиска и общей характеристики использованных источников [5, с. 23-26].

В разделе 11 «Особенности составления библиографических ссылок на архивные документы» ГОСТ Р 7.0.5-2008 описаны особенности и состав ссылки на архивные документы [5, с. 24]. Название архивохранилища приводится в виде аббревиатуры, допускается и цифровое обозначение, если номер присвоен при определении статуса архивохранилища и отражает местонахождение. Далее проставляется обозначение и номер фонда и «... все элементы поисковых данных, принятые в конкретном архивохранилище, необходимые для идентификации документа (например, номер и название части фонда, номер картона, годы, если они являются элементом поисковых данных, и т.п.). В качестве обозначения архивного фонда, описи, порядкового номера дела (единицы хранения), зафиксированного в архивной описи, используют сокращения: «ф.» (фонд), «оп.» (опись), «д.» (дело), «ед. хр.» (единица хранения), «N» (номер), «об.» (оборот) — в зависимости от того, какие обозначения приняты в данном архивохранилище... После номера фонда в круглых скобках может быть указано его название... в примечаниях могут быть приведены указания на подлинность документа, его автографичность, язык, способ воспроизведения, сведения об особенностях внешнего вида документа, о публикациях документа и др.» [5, с. 24].

Примеры ссылок на архивные документы по ГОСТ Р 7.0.5-2008 [5, с. 24-26]:

ОР РГБ. Ф. 573. Оп. 1. Картон 5. Д. 14. Л. 18 — 20.

ОАД РНБ. Ф. 1. Оп. 1. 1856 г. Ед. хр. 21.

РГАДА. Ф. Сената

ГАРФ. Ф. А-513. Оп. 1. Д. 12. Л. 14.

НБА РКП. Ф. 2. Оп. 1. Д. 1. Копия. Подлинник: ГАРФ. Ф. Р-9658. Оп. 6. Д. 1.

Доклад начальника Главного управления по делам печати Н. Татищева министру внутренних дел,

1913 г. // РГИА. Ф. 785. Оп. 1. Д. 188. Л. 307. — Опул.: Машкова М.В., Сокурова М.В.

Из истории возникновения «Книжной летописи» // Сов. библиогр. 1957. N 47. С. 19.

Нормативными документами в области архивного дела устанавливается обязанность пользователей при использовании документов архива организации приводить ссылки на место хранения документов [1, с. 27-29; 2, с. 66-73; 4, с. 54-59, 5, с. 23-26]. Применение ссылок на архивные документы в научных исследованиях является показателем высокого уровня профессиональной культуры.

Цель данного исследования состоит в определении проблем научного использования документов архивного фонда предприятия и создании концепции его «архивной реконструкции».

Объектом исследования является архивный фонд ФГУП «РАДОН».

Предметом исследования – структура, состав архивных документов и взаимосвязи между ними, степень востребованности, уровень научно-справочного аппарата.

Проблемы научного использования архивного фонда согласно методике [3], можно разделить на три группы: отсутствие планового комплектования архивного фонда за период с 1961 года по 2017 год, раздробленность документального фонда предприятия на «фонды» и «архивы» структурных подразделений, отсутствие научного описания, фондирования и научно-справочного аппарата в архиве.

Комплектование архива документами является начальным процессом в группе процессов «Управление архивным делом». Практически все процессы предприятия сопровождаются их документированием и формированием документов в дела в делопроизводстве структурных подразделений. Основой систематизации документального фонда предприятия является номенклатура дел. Документы группируются в дела в соответствии с номенклатурой дел по тематическому, хронологическому, видовому и др. признакам. Планируется в рамках исследования проанализировать регламентирующие документы предприятия и составить схему классификации к номенклатуре дел. Такого рода классификатор имеет большое практическое значение, так как устанавливает понятные правила формирования дел, способствует исключению ошибочного формирования документа и его копий в разные дела.

Документальный фонд предприятия полностью учтен в номенклатуре дел.

В его состав входят документы по всем направлениям деятельности предприятия на текущий период. Данные по количеству дел ежегодно учитываются в итоговой записи к номенклатуре дел предприятия и отслеживаются по плану – графику комплектования архива («выход» в процесс комплектования архива).

Процесс комплектования на предприятии выстроен сравнительно недавно (в 2018 году проведен учет документов по номенклатуре дел, составлена итоговая запись к номенклатуре дел предприятия за 2017 год).

При анализе данного процесса установлено, что:

1960 по 1980 гг.	номенклатура дел отсутствует;
1981 по 2003 гг.	номенклатура дел охватывает только дела, сформированные в канцелярии;
2003 по 2015 гг.	номенклатура дел составлена, но использован «смешанный» принцип составления номенклатуры (разделы имеют наименования и по подразделениям, и по тематическим направлениям деятельности);
1981 по 2015 гг.	итоговые сведения к номенклатурам дел с не подводились.

Таким образом, отсутствие централизованного контроля за процессом комплектования архива привели к частичному формированию архивного фонда, к его раздробленному хранению по структурным подразделениям.

Первые сведения о наличии архивного фонда отражены в акте передачи архива ЦСРБ от 13.11.1980¹, количество единиц хранения – 446. По акту проверки наличия и состояния дел архива от 03.06.1996², составленного комиссией на основании приказа Загорского филиала ГУП МосНПО «Радон» от 10.01.1996 №4³, установлено, что в архиве на дату окончания проверки числится 2381 единиц хранения. По данным акта проверка проводилась с 01.02.1996 по 30.04.1996 в связи с передачей документов архива из структурного подразделения «Канцелярия»⁴ в структурное подразделение «Бюро служебной документации».

В акте определен следующий состав принятых документов: приказы по личному составу за период с 1960 по 1991 гг., приказы по основной деятельности за период с 1960 по 1993 гг., лицевые счета за период с 1960 по 1987 гг., личные карточки уволенных работников за период с 1960 по 1990 гг., основания к приказам с 1974 по 1991 гг., срок хранения определен – постоянно.

По книге поступлений учитывались документы, поступающие в бюро служебной документации, канцелярию, отдел административного сопровождения и документооборота, за период с 1996 по 2015 гг. (с №1 по №6789). Движение документов с нарастающим итогом в книгах поступления не отслеживалось, по каждому году производилась итоговая запись об общем количестве поступивших за год документов, итоги по документам с различными сроками хранения не подводились. Динамика формирования архивного фонда с 1997 по 2016 гг. прослеживается из отчетов по архиву.

Специалистами архива был создан топографический указатель с привязкой к книге поступлений, карточки написаны от руки и содержат информацию по структурным подразделениям: бухгалтерия, канцелярия, отдел кадров, отдел организации труда.

На основании приказа от 01.12.2016 №335/670-П «Об утверждении организационной схемы и штатного расписания» создано структурное подразделение – Архив ФГУП «РАДОН» с 01.03.2017⁵.

В период с 01.03.2017 по 30.07.2018 проводилась проверка наличия и экспертиза ценности документов, оценка степени научно-технической обработки и сохранности принятых документов.

В результате проверки определена фондовая принадлежность документов и устранены ошибки фондирования:

- а) архивные документы за период с 1958 по 1994 гг. по спецпрачечной выделены в фонд №1 «Фабрика «Спецпрачечная», архивные документы спецпрачечной с 1994 года включены в состав фонда №2 ФГУП «РАДОН» на общих основаниях;
- б) архивные документы, распределенные по структурно-номинальному признаку, переформированы по срокам хранения и включены в едином фонде № 2 ФГУП «РАДОН» по хронологии за период с 1961 по 2014 гг.

При фондировании и составлении схемы систематизации документов фонда №2 учитывалась история создания и развития предприятия (постоянное изменение организационной структуры в связи с открытием новых направлений деятельности, не устойчивость штатной структуры – реорганизация, переименования структурных подразделений) и применена схема №3 – хронологическая.

При упорядочении документов постоянного срока хранения выявлено следующее: балансы предприятия за период с 1960 по 2003 гг. содержат программы по основной деятельности предприятия и отчеты об их выполнении; штатные расписания, утвержденные приказом, формировались отдельно от приказов; стандарты предприятия/стандарты организации, технологические регламенты, инструкции, методики измерений, вводимые в действие приказом, формируются отдельно от приказов и хранятся в отделе технического регулирования и менеджмента качества.

При составлении архивных описей выяснено, что единые правила формирования документов в дела на предприятии — отсутствовали.

Ввиду территориально — распределенных офисов формирование дел, регистрация и хранение документов осуществлялось:

- с 1960 по 2014 гг. включительно в Загорском⁶ отделении (в дальнейшем – Сергиево-Посадском отделении);
- с 1988 по 2014 гг. включительно в московском отделении (г. Москва, 7-й Ростовский переулок, д. 2/14; г. Москва, Волоколамское шоссе, д. 87, к.1; г. Москва, улица Вагоноремонтная, д. 25 Б).

Таким образом, применение территориально-распределенного принципа формирования и хранения дел в структурных подразделениях и отсутствие единых правил повлекло различные способы оформления дел по одной группе документов.

При упорядочении документов по личному составу за период с 1960 по 2014 гг. было выявлено следующее: журналы регистрации приказов присутствуют частично; лицевые счета с 1960 по 1993 гг. представляют журналы формата А3, прошитые, со списком вначале журнала, по которому проводится поиск по всему журналу начислений заработной платы; таблицы учета рабочего времени формировались по хронологическому признаку — ежемесячно, внутри месяца – по структурным подразделениям; путевые листы по Загорскому и московскому отделениям предприятия сформированы в дела частично по хронологическому признаку, а частично по алфавитному признаку.

Описание фонда №2 отражено в архивной описи документов с постоянным сроком хранения с 1960 по 2014 гг. (ф. 2, оп. 1, в количестве 959 ед. хр.) и архивной описи документов по личному составу с 1960 по 2014 гг. (ф. 2, оп. 1-лс, в количестве 4089 ед. хр.). В архивных описях частично отражен видовой состав архивного фонда №2, особенности формирования дел описаны в предисловиях к архивным описям.

На основании проведенного описания и составления архивных описей установлены архивные шифры. Например, при использовании в научном исследовании приказа по Московскому научно – производственному объединению «Радон» от 27.12.1994 №343 «О премировании работников за ввод в эксплуатацию жилого дома №28» должна указываться следующая библиографическая ссылка:

ФГУП «РАДОН». Арх. №335/39/103. Ф. 2, Оп. 1. Ед. хр. 291, Л. 7.

Сведения об использовании фонда №2 с 1998 по 2018 гг. представлены в ежегодных отчетах по архиву о количестве и составе внутренних и внешних запросов. В основном, о предоставлении информации о стаже работы для формирования уточняющей справки о характере работ по работникам, занятых во вредных условиях; предоставление документов в суд; в структурные подразделения для подготовки документов и т.д.

При проведении выездных документальных проверок сотрудниками Пенсионного фонда проверяются подлинники архивных документов из различных групп документов. По описи 1 предоставляются положения и должностные инструкции, штатные расписания, приказы по основной деятельности, коллективные договоры, а по описи 1-лс — приказы по личному составу (прием, перевод, увольнение, отпуска без сохранения заработной платы, учебные отпуска и др.), личные карточки на уволенных работников, лицевые счета, поименные списки, таблицы на работников вредных профессий, журналы выдачи заданий, путевые листы на водителей спецтранспорта, индивидуальные карточки учета доз облучения персонала и т.д.

В фонде №2 отсутствуют документы и описания к ним по следующим группам: научно-техническая документация, нормативно-техническая документация, кинодокументы, фонодокументы, фотодокументы и другие. В схеме систематизации учтены данные группы документов и открыты архивные описи. В состав архивного фонда должны поступить отчеты по научно-исследовательской работе, проектные, конструкторские, технологические, программные, научно-исследовательские документы и т.д.

Фондирование, упорядочение единиц хранения по схеме систематизации фонда, составление исторической справки к фонду, архивных описей и предисловий к ним, топографического указателя являются первым этапом к созданию эффективного научно-справочного аппарата к архивному фонду предприятия.

В рамках данного исследования впервые автором проанализирован состав документов архивного фонда, выявлена и устранена ошибка фондирования, установлена корневая причина возникающих проблем при научном использовании архивного фонда — в отсутствии планового комплектования архива с момента создания предприятия, определены направления по реконструкции архивного фонда №2 и созданию научно-справочного аппарата к нему.

Применив методику «реконструкции архивного фонда» предприятия, предстоит решить следующие задачи:

- a) провести полное комплектование архивного фонда предприятия,
- b) составить архивные описи и топографический указатель,
- c) исследовать наличие документов по истории предприятия в других архивах,
- d) результаты отразить в обзоре по архивному фонду и представить рекомендации по использованию фонда №2 в исследовании «Архивный фонд ФГУП «РАДОН»: научное использование и реконструкция».

Список литературы

1. Правила организации хранения, комплектования, учета и использования документов архивного фонда Российской Федерации и других архивных документов в органах государственной власти, органах местного самоуправления и организациях / Росархив, ВНИИДАД. – М.: ИПО «У Никитских ворот», 2018. – 98 с.
2. Правила организации хранения, комплектования и использования документов Архивного фонда Российской Федерации и других архивных документов в государственных и муниципальных архивах, музеях и библиотеках, организациях Российской академии наук / м-во культуры и массовых коммуникаций РФ, Федер. арх. агентство, ВНИИДАД. М., 2007. 187 с.
3. Методические рекомендации по применению Правил организации хранения, комплектования, учета и использования документов архивного фонда Российской Федерации и других архивных документов в органах государственной власти, органах местного самоуправления и организациях / ВНИИДАД. – М.: РИД РосНОУ, 2018. – 176 с.
4. Основные Правила работы архивов организаций» (одобрены решением Коллегии Росархива от 06.02.2002, документ опубликован не был). 121 с.
5. ГОСТ Р 7.0.5-2008. Библиографическая ссылка. Общие требования и правила составления.
6. Составление архивных описей в электронной форме и их интеграция в информационную инфраструктуру государственных и муниципальных архивов: Методические рекомендации / Федеральное архивное агентство. ВНИИДАД. – М., 2015. – 112 с.
7. Лаптева Т.Н. Личный фонд историка-эмигранта А.В. Флоровского в архиве Российской академии наук: научное использование и реконструкция. Диссертация на соискание ученой степени кандидата исторических наук. URL: http://www2.rsuh.ru/binaru/object_44.1512559431.35291.pdf. 237 с.

¹ ФГУП «РАДОН». ЦХ №335/39/103-1-ЦОХ. Ед. хр. 4141. Л. 1.

² ФГУП «РАДОН». ЦХ №335/39/103-1-ЦОХ. Ед. хр. 4141. Л. 140.

³ ФГУП «РАДОН». Арх. №335/39/103. Ф. 2. Оп. 1. Ед. хр. 323. Л. 18.

⁴ Канцелярия с 1988 г., бюро служебной документации с 21.07.1995, в 2004 году бюро служебной документации вошло в состав канцелярии.

⁵ ФГУП «РАДОН». ЦХ №335/39/103-1-ЦОХ. Ед. хр. 4193. Л. 57-58.

⁶ город Загорск переименован в город Сергиев Посад в 1991 году.

Твердые и жидкие радиоактивные ОТХОДЫ



УДК 621.039.73

Переработка жидких радиоактивных отходов, накопленных в Грузии

Савкин А.Е., Карлин Ю.В.

ФГУП «РАДОН»

e-mail: savkin_ae@mail.ru

На основании экспериментальных работ с имитаторами ЖРО разработана технология фильтрационно – сорбционной очистки от ^{226}Ra с использованием диоксида марганца. По данной технологии изготовлена мобильная установка производительностью 0,45 м³/час, которая доставлена на площадку Саакадзе, Грузия. Для полного освобождения емкости Т1 на установке очищено 50 м³ ЖРО до уровня, позволяющего сброс в окружающую среду. Очищенная вода размещена в емкости Т2 до получения разрешения на сброс. Установка выведена из эксплуатации. Отработавшее оборудование установки и вторичные РАО отверждены в трех 200 – литровых бочках цементным раствором на основе очищенной воды и отработавшей ионообменной смолы. Бочки подготовлены для транспортировки в центральное хранилище РАО Грузии. В результате переработки накопленных ЖРО коэффициент сокращения объема радиоактивных отходов составил 75,8, что значительно снизит затраты на захоронения по сравнению с осадительными методами очистки ЖРО.

Ключевые слова: ЖРО, сорбционная очистка, радий – 226, диоксид марганца, катионит, цементирование.

Treatment of liquid radioactive waste accumulated in Georgia

Savkin A.E., Karlin Yu.V.

RADON FSUE

e-mail: savkin_ae@mail.ru

On the basis of experimental work with imitators of liquid radioactive waste (LRW) technology of filtration and sorption purification from ^{226}Ra with manganese dioxide was developed. According to this technology, the mobile plant with a capacity 0.45 m³/hour was manufactured and delivered to the site Saakadze, Georgia. To completely release of the tank T1 50 m³ LRW was cleaned to a level that allows discharge into the environment. The purified water is placed in the T2 tank until a discharge permit is obtained. The plant has been decommissioned. The spent equipment of the plant and secondary radwaste are solidified in three 200 – liter barrels with a cement compound based on purified water and spent ion exchange resin. The barrels are prepared for transportation to the Centralized Storage Facility of Georgia. As a result of processing of the accumulated LRW, the volume reduction factor of radioactive waste amounted to 75.8, which will significantly reduce the cost of disposal compared to the sedimentary methods purification of LRW.

Keywords: LRW, sorption, Ra-226, manganese dioxide, cation -exchange resin, cementation.

Введение

В Грузии, в 30 километрах от г. Тбилиси, расположен пункт захоронения радиоактивных отходов Саакадзе. Пункт для приема РАО закрыт в 1988 году. В настоящее время принадлежит департаменту по обращению с радиоактивными отходами агентства радиационной и ядерной безопасности Грузии (ANRS). Площадка хранения состоит из одного заполненного хранилища приповерхностного типа ($22 \times 10 \times 5$ м) для твердых радиоактивных отходов и трех подземных емкостей для жидких отходов (~ 200 м³ каждая).

В двух емкостях находятся жидкие отходы (\sim по 50 м³), которые не являются радиоактивными ($^{226}\text{Ra} \sim 30$ Бк/кг). В одной емкости находится ~ 50 м³ ЖРО с удельной активностью по $^{226}\text{Ra} \sim 2020$ Бк/кг. Хотя емкости для ЖРО изготовлены из бетона и внутри облицованы нержавеющей сталью, хранение ЖРО в таком виде представляет серьезную угрозу окружающей среде.

Известно много технологий (осадительные, мембранные, сорбционные и др.), позволяющих очистить ЖРО от радия и продуктов его распада (ДПР). При использовании осадительных и мембранных методов очистки коэффициент сокращения объема РАО, как правило, не превышает 10. Использование сорбционных методов очистки в сочетании с фильтрацией зачастую позволяет достичь более высоких коэффициентов сокращения объемов РАО. Целью данной работы является переработка ЖРО, накопленных в ПЗРО Грузии с получением минимально возможного объема вторичных кондиционированных РАО, соответствующих критериям приемлемости для захоронения. Для достижения поставленной цели необходимо решить следующие задачи:

Уточнить радионуклидный состав накопленных ЖРО и их объем;

Отработать аналитический контроль процесса очистки ЖРО от ^{226}Ra с учетом проведения его в полевых условиях;

Определить основные технологические параметры процесса динамической сорбции ^{226}Ra из имитаторов ЖРО с использованием доступных сорбентов;

Отработать рецептуру отверждения отработавших сорбентов;

Разработать технологическую схему мобильной установки очистки ЖРО с использованием выбранных сорбентов, провести комплектацию стандартного оборудования установки и изготовить нестандартное оборудование;

Доставить мобильную установку в Грузию и провести очистку накопленных ЖРО;

Вывести установку из эксплуатации, кондиционировать все вторичные РАО и загрязненное оборудование установки.

Работа выполнена в рамках контракта между ФГУП «РАДОН» и МАГАТЭ РО № 201701014-AS от 2017-02-10.

Экспериментальная часть

Сорбционную очистку имитаторов ЖРО от ^{226}Ra в лабораторных условиях проводили путем пропускания растворов через две последовательно соединенные сорбционные колонки. Фильтраты на выходе второй колонки собирали по фракциям и определяли суммарную α , β - удельную активность и ^{226}Ra . В качестве сорбентов использовали синтетический неорганический гранулированный сорбент на основе диоксида марганца (товарная марка МДМ, изготовитель ИФХЭ РАН РФ – Институт физической химии и электрохимии Российской Академии наук Российской Федерации) и катионит Dowex HCR-S (аналог КУ-2-8).

Анализ на кальций проводили титрованием аликвоты фильтрата раствором ЭДТА в присутствии индикатора Мурексида, рН – с помощью рН-метра И-115. Радионуклидный состав растворов определяли с помощью γ -спектрометра с полупроводниковым детектором. Суммарную α - удельную активность определяли на радиометре УМФ-2000 и на альфа – радиометре КРК с блоком детектирования БДЗА-2-01.

Измерения на γ -спектрометре проводили в геометрии сосуда Маринели (0,5 л), а для измерения на радиометре 10 мл раствора упаривали на мишени 60 мм.

Результаты и их обсуждение

Очистка имитатора ЖРО в лабораторных условиях

Как уже отмечалось, использование сорбционных методов очистки позволяет достичь более высоких коэффициентов сокращения объемов РАО по сравнению с осадительными и мембранными методами. Содержание радионуклидов в ЖРО составляет микроскопическую величину. Исключением являются отходы рудных производств, гидрометаллургических заводов и других производств ядерного топлива из природного урана. В таких ЖРО содержание природного урана может составлять миллиграммы на литр. Поэтому идеальная система переработки ЖРО должна выделять только радионуклиды, а всю очищенную воду с содержащимися в ней неактивными компонентами сбрасывать в окружающую среду или использовать в производстве. В этом случае объем получаемых вторичных отходов минимален. Они могут быть отверждены и захоронены с минимальными затратами [1].

Однако в ряде случаев в очищенной воде содержатся токсичные вещества и (или) концентрация солей превышает нормы, установленные для рыбохозяйственных водоемов. В таких ситуациях из очищенной от радионуклидов воды извлекаются неактивные компоненты, которые утилизируются или захораниваются как общепромышленные отходы. Очищенная вода сбрасывается в открытую гидросеть или используется в производстве. В этом случае объем получаемых радиоактивных отходов соответствует первому варианту. При этом возникают дополнительные отходы, которые требуют дополнительной переработки и хранения. Стоимость очистки в таком варианте несколько выше, чем у «идеального».

Поэтому в лабораторных условиях были опробованы оба варианта. В первом случае в качестве сорбента использовали МДМ [2-5], а во втором – катионит Dowex HCR-S.

Очистку имитаторов в лабораторных условиях проводили на установке, состоящей из емкости исходного раствора, перистальтического насоса и двух последовательно соединенных сорбционных колонок, заполненных сорбентом. Объем сорбента в каждой колонке – 7,5 см³, высота слоя сорбента – 30 см [6].

В составе мобильной установки для очистки ЖРО от ²²⁶Ra в Грузии может быть использован фильтр – контейнер ФК-2. Фильтр – контейнер ФК-2 состоит из фильтра, заполненного сорбентом и размещенного в стандартной металлической 200-литровой бочке. Объем сорбента – 75 л, высота загрузки сорбента – 60 см. Желательная производительность установки с учетом накопленного объема в Грузии – 10 м³/сутки, что составляет 0,4 - 0,45 м³/час или ~ 6 колоночных объемов в час.

В лабораторных экспериментах, чтобы полностью воспроизвести условия фильтрации в фильтре – контейнере, использовали 2 фильтра, заполненных сорбентом. Два лабораторных фильтра по высоте загрузки соответствовали одному фильтру-контейнеру. Скорость пропускания раствора – 90 см³/ч или 6 колоночных объемов в час.

В качестве исходного раствора использовали водопроводную воду, в которую добавили раствор ²²⁶Ra до суммарной α – удельной активности 530 Бк/кг, которую определяли на радиометрах УМФ – 2000 и КРК. Концентрация кальция в имитаторе ЖРО составила 2,5 мг-экв./л. Результаты сорбции из имитатора ЖРО с помощью сорбента МДМ и катионит Dowex HCR-S представлены в табл. 1 и 2.

Таблица 1

Результаты сорбции с помощью сорбента МДМ

№ отбора	Объем, мл	Общий объем, мл	Общий объем, колоночных объемов	Суммарная α -удельная активность, Бк/кг КРК	Суммарная α -удельная активность, Бк/кг УМФ-2000	Концентрация кальция в фильтрате, мг-экв./л
1	1200	1200	80	17		< 0,5
2	700	1900	127	8,3		< 0,5
3	1450	3350	223	3,7	4,2	< 0,5
4	800	4150	277	6,6		0,55
5	1450	5600	373	8,5		1,5
6	700	6300	420	4,0	3,5	2,0
7	1450	7750	517	10,4		2,5
8	700	8450	563	8,2		2,5
9	800	9250	617	5,5	4,1	2,5

Таблица 2

Результаты сорбции с помощью катионита Dowex HCR-S

№ отбора	Объем, мл	Общий объем, мл	Общий объем, колоночных объемов	Суммарная α -удельная активность, Бк/кг КРК	Суммарная α -удельная активность, Бк/кг УМФ-2000	Концентрация кальция в фильтрате, мг-экв./л
1	1600	1600	107	< 3		< 0,5
2	800	2400	160	< 3	< 3	< 0,5
3	1500	3900	260	< 3		< 0,5
4	750	4650	310	< 3		< 0,5
5	700	5350	357	< 3		< 0,5
6	700	6050	403	< 3		2,5
7	500	6550	437	< 3	< 3	2,5
8	1600	8150	543	< 3		2,5

Как видно из представленных данных, оба сорбента обеспечивают высокую очистку от альфа – нуклидов (^{226}Ra и ДПР). В фильтрате № 9 при использовании сорбента МДМ была измерена удельная активность на гамма – спектрометре. ^{226}Ra не был обнаружен при минимально – детектируемой удельной активности 1 Бк/кг. Несколько меньшая эффективность очистки при использовании сорбента МДМ, по – видимому, объясняется гранулометрическим составом МДМ (до 2 мм) и относительно малым диаметром лабораторного фильтра (5 мм). Возможно, происходит небольшой проскок радионуклидов вдоль стенки фильтра.

Как отмечалось, суммарную удельную активность определяли с помощью двух радиометров. Как видно, величины, определенные с помощью обоих приборов, очень близки. Поэтому для проведения аналитического контроля очистки ЖРО от ^{226}Ra в полевых условиях может быть рекомендован радиометр КРК, вес которого в 10 раз меньше веса УМФ-2000.

Измерения концентрации кальция в фильтрате показали, что при исчерпании ресурса обоих сорбентов по кальцию, сорбенты продолжают очищать раствор от ^{226}Ra . Т.е. определение концентрации кальция в фильтратах ЖРО может быть экспрессным анализом (время анализа – 5 мин.) качества очистки от ^{226}Ra . Если в фильтрате отсутствует кальций, то это означает, что ^{226}Ra эффективно задерживается сорбентом.

В емкости с накопленными ЖРО в Грузии, кроме ^{226}Ra и продуктов его распада, присутствуют взвеси. Для их отделения может быть рекомендован мешочный фильтр с тканым фильтрующим элементом с размерами пор 1 мкм. Взвеси также могут образовываться при эксплуатации фильтра, заполненного сорбентом МДМ. Поэтому мобильная установка для очистки ЖРО в Грузии должна включать:

- мешочный фильтр для отделения взвесей, присутствующих в емкости с ЖРО;
- фильтр с сорбентом МДМ для очистки от ^{226}Ra ;
- мешочный фильтр для отделения взвесей от сорбента МДМ;
- фильтр с катионитом Dowex HCR-S для доочистки от ^{226}Ra , ДПР и солей.

Вторичными радиоактивными отходами, которые будут образовываться в результате эксплуатации мобильной установки, будут: отработавшие сорбенты в фильтрах, отработавшая ионообменная смола в случае исчерпания ресурса и ее замены в фильтре, отработавшие мешочные фильтры и фильтрующие элементы, насос, запорная арматура и трубопроводы.

200 – литровая бочка является унифицированной упаковкой для захоронения во многих странах. Поэтому она может быть рекомендована для размещения всех вторичных отходов. По окончании работ сорбенты в фильтрах могут быть зацементированы в бочках, причем без извлечения сорбентов из корпусов. Отработавшие мешочные фильтры и фильтрующие элементы, насос, запорная арматура и трубопроводы также могут быть размещены в бочке и включены в цементный компаунд на основе очищенной от радионуклидов воды или в смеси с отработавшей смолой, полученной при замене смолы в фильтре.

Цементный компаунд на основе отработавшей смолы должен отвечать регламентированным требованиям [7]. Для определения рецептуры цементного компаунда на основе отработавшей ионообменной смолы была проведена серия экспериментов, показавшая, что для кондиционирования вторичных РАО может быть рекомендован цементный компаунд на основе отработавшей смолы при водоцементном отношении 0,5 и содержании отработавшей смолы в компаунде 5 – 10 % в пересчете на сухую смолу.

Очистка ЖРО в Грузии

По результатам работ, проведенных в лабораторных условиях, была разработана технологическая схема мобильной установки (см. Рис. 1).

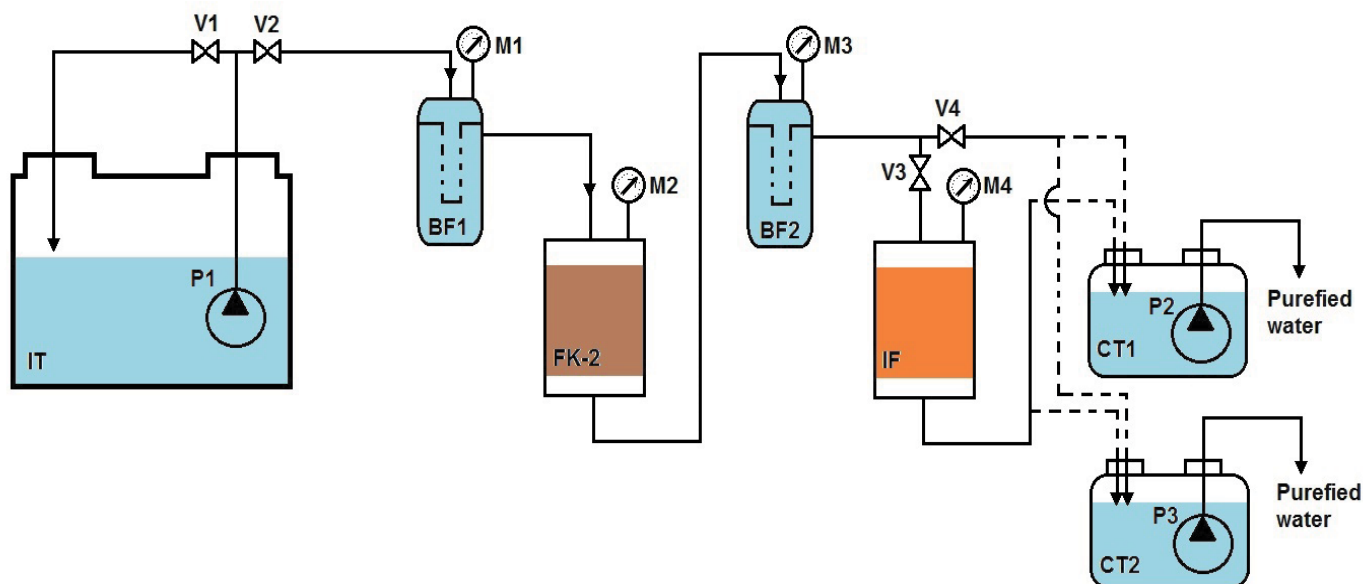


Рис 1 – Технологическая схема мобильной установки для очистки ЖРО

- IT – емкость с исходными ЖРО; BF1 и BF2 – мешочные фильтры;
 FK-2 – фильтр-контейнер с селективным неорганическим сорбентом МДМ;
 IF – ионообменный фильтр с катионообменной смолой;
 CT – пластиковая контрольная емкость; P1 – погружной центробежный насос;
 M1-M4 – манометры, V1-V5 – шаровые вентили, T2 – емкость.

Монтаж установки был проведен в Грузии в соответствии со схемой. Установку смонтировали на поверхности емкости IT. Забор ЖРО производился через люк емкости. Сброс очищенной на установке воды проводили в контрольную емкость CT, размещенную на поверхности емкости T2. После анализа очищенную воду самотеком сливали в емкость T2 через люк. Размещение аппаратов обеспечивало свободный доступ к шаровым вентилям и местам соединений трубопроводов.

Перед началом работ по очистке ЖРО был проведен отбор и анализ проб ЖРО из емкостей IT и T2. Эти работы были выполнены, чтобы определить реальные значения объемов, удельной активности и концентрации кальция в обеих емкостях с использованием имеющегося оборудования. Результаты измерений представлены в таблице 3.

Таблица 3

Результаты анализа исходных ЖРО

№	№ емкости	Концентрация кальция, мг-экв/л	$\Sigma\alpha$, Бк/л	^{226}Ra , Бк/л по данным АМС	Объем жидкости, м ³
1	IT	21	1024	1215	48
2	T2	19	6,4	<25,9	36

Как видно, к ЖРО можно отнести только содержимое емкости T1.

Удельную активность по отдельным радионуклидам определили на гамма – спектрометре в Агентстве стандартов и Метрологии Грузии (АСМ). Кроме того, был рассчитан объем ЖРО по измеренному уровню жидкости в обеих емкостях.

Очистку ЖРО начали проводить при работающем фильтре FK-2 и фильтре IF. В ходе очистки поддерживали производительность 0,45 м³/час. После заполнения контрольной емкости останавливали процесс очистки и производили отбор проб фильтрата для определения:

- концентрации кальция;
- суммарной альфа – удельной активности на радиометре КРК;
- удельной активности по отдельным радионуклидам.

Только тогда, когда имели положительный результат по содержанию кальция или суммарной удельной альфа – активности из пробы заполненной контрольной емкости, производили сброс очищенной воды из контрольной емкости в емкость Т2 и возобновляли процесс очистки.

Основные результаты очистки ЖРО представлены в табл. 4.

Таблица 4

Результаты очистки ЖРО

№	Объем, м ³	Объем, колоночных объемов	Концентрация кальция, мг-экв/л	Σα, Бк/л	²²⁶ Ra, Бк/л	
					По данным ФГУП «РАДОН»	По данным АМС Грузии
Ф5	5	66,7	0	31,1		
Ф6	8	107	14,5	32,3		
Ф7	11	147	21	36,1		6,9
Ф8	15	267	21	34,9		
Ф9	20,5	273	21	29,2	6,4	<25,9
Ф10	24,5	327	21	44,5		
Ф11	31	413	21	41,9		<33,5
Ф12	35,5	473	21	37,1		
Ф13	41,5	553	21	62,7	11,0	<40,1
Ф14	47,5	633	2	55,0		

В ходе работ произвели несколько замен фильтрующего элемента в фильтре BF-1 и BF-2.

После пропускания 41,5 м³ раствора эффективность очистки фильтра FK – 2 начала снижаться. Поэтому фильтр FK-2 был отключен. В фильтре IF произвели замену ионообменной смолы и продолжили очистку с помощью фильтра BF-1 и фильтра IF до полного освобождения емкости Т1. Общий объем очищенных ЖРО, измеренный счетчиком воды, составил 50 м³.

После завершения работ по очистке был произведен отбор пробы и анализ из емкости Т2. Суммарная альфа – удельная активность составила 11 Бк/л, суммарная бета – удельная активность составила менее 19 Бк/л и удельная активность по ²²⁶Ra – 11,0 Бк/л (данные ФГУП «РАДОН»). Таким образом, полученный после очистки раствор не является радиоактивным отходом и может быть сброшен в окружающую среду после получения разрешения ANRS.

По окончании работ установка была демонтирована и выведена из эксплуатации. Для этого сорбенты в фильтрах зацементировали в этих же бочках, причем сорбенты не извлекали из корпусов. Для приготовления цементного раствора с помощью миксера Hitachi UM16VST использовали очищенную воду из емкости СТ и отработавшую смолу. Отработавшие фильтрующие элементы, трубопроводы и насос разместили в бочке с мешочными фильтрами. Свободное пространство в бочках заполнили цементным раствором на основе очищенной воды из контрольной емкости и ионообменной смолы. Всего было получено 3 бочки.

Металлические бочки с зацементированными вторичными радиоактивными отходами являются готовой упаковкой, которую можно направить на хранение в Центральное хранилище РАО Республики Грузия.

Таким образом, коэффициент сокращения объема радиоактивных отходов составил 50 м³: (0,22 м³ × 3) = 75,8.

Выводы

1. На основании экспериментальных работ с имитаторами ЖРО разработана технология фильтрационно – сорбционной очистки с использованием диоксида марганца. По данной технологии изготовлена мобильная установка производительностью 0,45 м³/час, которая доставлена на площадку Саакадзе, Грузия.

2. Для полного освобождения емкости ИТ на установке очищено 50 м³ ЖРО до уровня, позволяющего сброс в окружающую среду. Очищенная вода размещена в емкости Т2 до получения разрешения на сброс.

3. Установка выведена из эксплуатации. Отработавшее оборудование установки и вторичные РАО отверждены в трех 200 – литровых бочках цементным раствором на основе очищенной воды и отработавшей ионообменной смолы. Бочки подготовлены для транспортировки в центральное хранилище РАО Грузии. В результате переработки накопленных ЖРО коэффициент сокращения объема радиоактивных отходов составил 75,8, что значительно снизит затраты на захоронения по сравнению с осадительными методами очистки ЖРО.

Список литературы

1. Рябчиков Б.Е. Очистка жидких радиоактивных отходов. Москва: Дели принт, 2008, 516 с.
2. В.В. Милютин, Н.А. Некрасова, Е.А. Козлитин. Селективные неорганические сорбенты в современной прикладной радиохимии. Труды Кольского научного центра. Химия и материаловедение. II Всероссийская научной конференции с международным участием «Исследования и разработки в области химии и технологии функциональных материалов». г. Апатиты, 25-27 ноября 2015 г. Спецвыпуск. №5. 2015. С. 418-421.
2. S.A. Dmitriev, D.V. Adamovich, Yu. T. Slastennikov, V.V. Milyutin, V.M. Gelis Development of the technology for producing industrial-scale batches of the selective sorbent for LWR decontamination from strontium and results of its application // Proceedings of the International Conference WM'2006, Tucson, AZ, USA, CD-ROM, 2006
4. Авраменко В.А., Железнов В.В., Каплун Е.В. и др. Сорбционное извлечение стронция из морской воды // Радиохимия. – 2001. — Т. 43. -№4. -С. 381-384.
5. Авраменко В.А., Бурков И.С, Голиков А.П. Поглощение стронция сорбционно-реагентными материалами // Ж. физ. Химии. – 2004. – Т. 78. – №3. – С. 493-496.
6. Савкин А.Е. Разработка и испытания технологии переработки жидких радиоактивных отходов АЭС// Радиохимия. – 2011, т. 53, № 5, С. 470 – 473.
7. НП-019-15. Федеральные нормы и правила в области использования атомной энергии «Сбор, переработка, хранение и кондиционирование жидких радиоактивных отходов. Требования безопасности».

УДК 621.039.73

Новые стекла для захоронения ВАО и актинидных отходов

Стефановский С.В.

Лаборатория радиэкологических и радиационных проблем

ИФХЭ им. А.Н. Фрумкина РАН, ФГУП «РАДОН»

e-mail:serge.stefanovsky@yandex.ru

Представлены новые стекла на алюмофосфатной и боросиликатной основах для иммобилизации высокоактивных отходов (ВАО) от переработки новых и ранее накопленных видов отработанного ядерного топлива (ОЯТ). Показано, что данные стекла характеризуются структурной гибкостью, позволяющей включать широкий спектр радионуклидов и технологических реагентов, и обладают высокой гидролитической и радиационной устойчивостью. В частности они способны инкорпорировать до ~10 масс.% оксидов редкоземельных элементов (РЗЭ) и до ~30-35 масс.% оксидов урана, имеют скорость выщелачивания макрокомпонентов и радионуклидов не менее 10^{-5} г/(см²×сут) по ГОСТ Р 52126 – 2003 и 10^{-2} - 10^{-3} г/(м²×сут) по методике РСТ и выдерживают внешнее облучение без нарушений структуры и ухудшения гидролитической устойчивости до поглощенной дозы ~10⁷ Гр.

Ключевые слова: синтез стекол, высокоактивные отходы, гидролитическая и радиационная устойчивость, скорость выщелачивания макрокомпонентов

New glasses for immobilization of high-level and actinide wastes

Stefanovsky S. V.

IFCE by A.N. Frumkin, RADON FSUE

e-mail:serge.stefanovsky@yandex.ru

New glasses on aluminophosphate and borosilicate bases for immobilization of high-level waste (HLW) from the processing of new and previously accumulated spent nuclear fuel (SNF) are presented. It is shown that these glasses are characterized by structural flexibility, allowing to include a wide range of radionuclides and process reagents. These glasses are highly hydrolytic and radiation resistant. In particular, they are able to incorporate up to ~ 10 wt.% Oxides of rare-earth elements and up to ~ 30-35 wt.% Uranium oxides. They have a leaching rate of macrocomponents and radionuclides of at least 10^{-5} g / (cm² day) according to GOST R 52126 - 2003 and 10^{-2} - 10^{-3} g / (m² day) using the PCT method. Such glasses withstand external irradiation without disturbing the structure and deteriorating hydrolytic stability up to an absorbed dose of ~ 10⁷ Gy.

Keywords: glass synthesis, high-level waste, hydrolytic and radiation resistance, leaching rate of macro-components

Введение

В настоящее время остекловывание ВАО считается одним из наиболее надежных методов их консолидации и иммобилизации и единственным, доведенным до стадии промышленного внедрения. В ряде стран с развитой ядерной энергетикой, таких как Франция, США, Великобритания, Индия, Япония, КНР, действуют промышленные или опытно-промышленные установки остекловывания на базе металлических и керамических плавителей с включением ВАО в боросиликатные стекла [1]. Во Франции также находится в опытной эксплуатации линия с индукционным плавителем холодным тиглем для остекловывания ВАО от переработки уран-молибденового ОЯТ [2]. Аналогичные разработки проводятся в США, Индии и Японии [1]. В России единственная промышленная установка остекловывания ВАО на базе керамического плавителя Джоулева нагрева от переработки ОЯТ энергетических реакторов ВВЭР-440, транспортных и исследовательских реакторов в алюмофосфатное стекло функционирует в ПО «Маяк» (г. Озерск Челябинской обл.) [3], а на ГХК (г. Железногорск Красноярского края) строится установка по переработке ВАО реакторов ВВЭР-1000 на базе холодного тигля с получением боросиликатного стекла. Более устойчивой во всех отношениях, чем стекло, является специальная керамика, но работы в этой области не продвинулись дальше лабораторных исследований и создания стендовых установок [1].

В России основной объем НИОКР по остекловыванию ВАО выполняется организациями ГК «Росатом», однако значительные достижения имеются и в Российской Академии Наук (РАН), в частности стекло на алюмофосфатной основе для ПО «Маяк» было разработано в Институте физической химии АН СССР (ныне ИФХЭ РАН) [4]. В настоящее время эти исследования продолжаются и развиваются в лаборатории Радиоэкологических и Радиационных Проблем (РРП) ИФХЭ РАН, в том числе в сотрудничестве с другими институтами РАН – ГЕОХИ РАН, ИГЕМ РАН и организациями Росатома – ПО «Маяк», ГХК и ФГУП «РАДОН». В настоящем обзоре излагаются основные результаты, полученные в лаборатории РРП в последние годы.

Методики и оборудование

При выполнении исследований для синтеза стекол и стеклокерамик использовалось традиционное оборудование (печи сопротивления, измельчители, смесители) а также лабораторная установка на базе ВЧ генератора с колебательной мощностью 10 кВт и частотой 5,28 МГц с набором неразборных и разборных холодных тиглей диаметром 50-80 мм и высотой 100-150 мм, изготовленными из медных трубок диаметром 12 мм. Для получения стеклокристаллических образцов расплавы или закаленные образцы подвергали медленному охлаждению или изотермическому отжигу в печи сопротивления.

Радиационную устойчивость стекломатериалов определяли путем облучения ускоренными электронами с энергией 8 МэВ на линейном ускорителе УЭЛВ-10-10-С70 до поглощенных доз от 10^4 до 10^7 Гр (некоторые образцы – до 10^8 Гр).

Для анализа получаемых стекломатериалов использовали методы порошковой рентгенографии (РФА), сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) с системой энергодисперсионного анализа спектров (ЭДС), инфракрасной Фурье, Рамановской (комбинационного рассеяния света – СКР), рентгеновской фотоэлектронной (РФЭС), электронного парамагнитного резонанса (ЭПР), рентгеноабсорбционной в околопороговом (XANES) и протяженном (EXAFS) диапазонах и Мэссбауэровской (ядерной гамма-резонансной - ЯГР) спектроскопии.

Гидролитическую устойчивость образцов определяли по ГОСТ Р 52126 – 2003 или по международной методике РСТ-А (измельченный образец при 90 °С, 7 сут.) [5].

Стекла для ВАО от прошлой оборонной деятельности

Первоначальный выбор алюмофосфатного стекла для применения в России был обусловлен необходимостью иммобилизации ВАО преимущественно натрий-алюминатного состава от переработки ОЯТ с алюминиевой оболочкой. Была определена область составов, масс. %: (24-27) Na_2O , (20-24) Al_2O_3 , (49-56) P_2O_5 – для синтеза при температурах до 1000 °С химически- и кристаллизационно-устойчивых натрий-алюмофосфатных стекол, содержащих до 10 масс. % оксидов ВАО [3]. При этом следует отметить, что некоторые партии новых типов ВАО или «исторические» отходы от оборонной деятельности, хранящиеся в емкостях из нержавеющей стали на ПО «Маяк», кроме натрия и алюминия содержат большое количество железа [6]. В этой связи стекла, которые будут получены при остекловывании таких отходов по своему составу будут натрий-алюмо-железофосфатными.

Усредненный состав стекла, разработанного ранее, (в мол. %): 40 Na₂O, 20 Al₂O₃, 40 P₂O₅ был нами модифицирован путем частичной замены Al₂O₃ на Fe₂O₃: 40 Na₂O, (20-x) Al₂O₃, x Fe₂O₃, 40 P₂O₅ (I) и уменьшения содержания Na₂O: 35 Na₂O, (20-x) Al₂O₃, x Fe₂O₃, 45 P₂O₅ (II) и было экспериментально показано, что при введении 5-10 мол. % Fe₂O₃ и более, кристаллизационная, гидролитическая и радиационная устойчивость стекол значительно повышаются. Закаленные образцы полностью аморфны, но даже после отжига образцы содержат лишь незначительное количество кристаллической составляющей (рис. 1). Композиции вышеуказанных стекол лежат в области между орто- и пиро-фосфатными линиями составов и формально имеют достаточно низкую степень связности фосфорнокислородной сетки, однако, по данным ИК и КР спектроскопии введение Al₂O₃ и Fe₂O₃ приводит к образованию поперечных связей Al-O-P и Fe-O-P, значительно повышающих степень связности структурной сетки стекол в целом, что приводит к улучшению их физико-химических характеристик [6,7].

Результаты изучения гидролитической устойчивости закаленных образцов стекол серии I представлены на рис. 2. Установлено, что начальные скорости выщелачивания всех элементов из порошков стекол с удельной поверхностью около 0,5 м²/г находятся на уровне (2÷5)×10⁻⁷ - (1÷2)×10⁻⁶ г/(см²×сут). С течением времени скорости выщелачивания снижаются и на 28-е сутки контакта с водой они имеют значения (4÷10)×10⁻⁸ г/(см²×сут). Скорости выщелачивания Na из высокожелезистых образцов (15 и 20 мол.% Fe₂O₃), а также Fe и P из образца, в котором Al полностью замещен на Fe, несколько больше: (2÷5)×10⁻⁷ г/(см²×сут). При этом для Fe и в меньшей степени Al имеет место незначительное увеличение скоростей их выщелачивания в первые 3-4 сутки контакта с водой закаленных образцов, что может быть связано с выходом этих элементов из поверхностного слоя образцов [6].

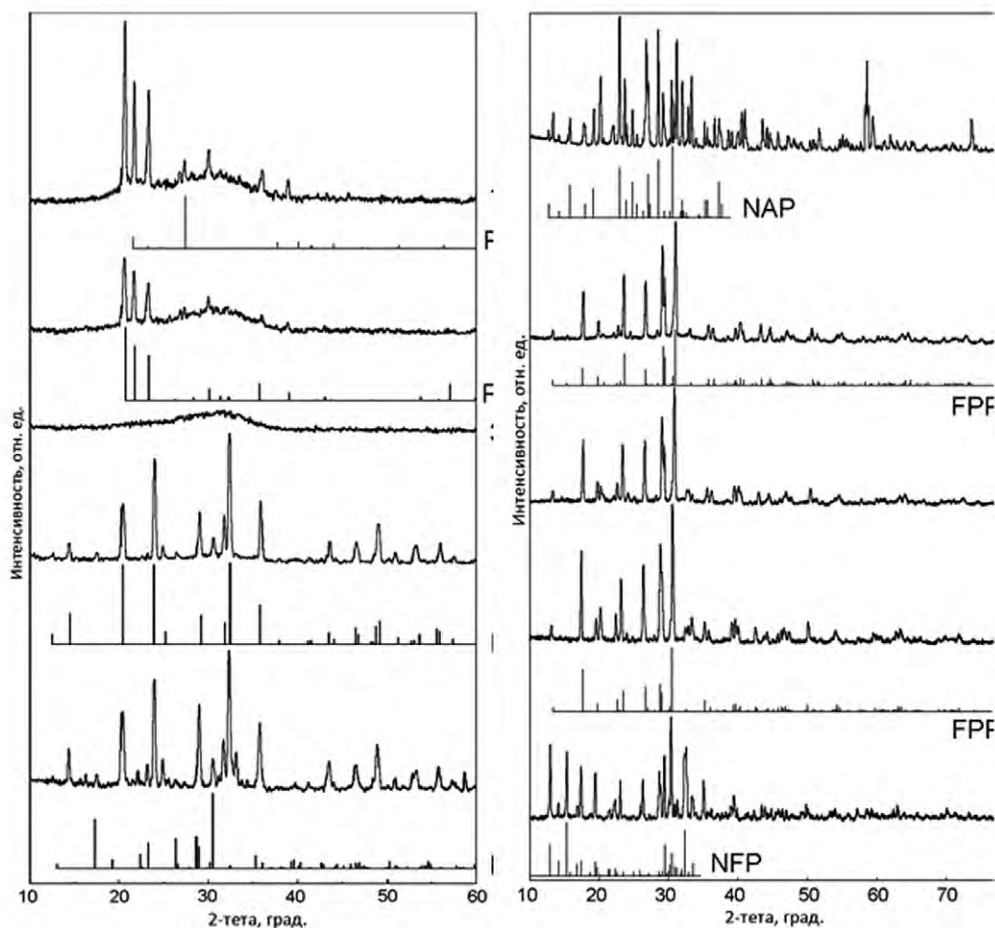


Рис. 1. Рентген-дифрактограммы отожженных образцов серий I и II

при x = 0 (1), 5 (2), 10 (3), 15 (4) и 20 (5)

PC – фосфокристалобалит; PQ – фосфокварц; PT – фосфотридимит;

FOP – Na₃Fe₂(PO₄)₃; FPP – NaFeP₂O₇, Na(Al,Fe)P₂O₇

Установлено, что замена до половины Al_2O_3 на Fe_2O_3 повышает гидролитическую устойчивость стекол, причем в первые 7 суток контакта с водой скорость выщелачивания Na минимальна для закаленного образца с $x=10$, а затем, она становится ниже для образца с $x=5$. При дальнейшем введении Fe_2O_3 вместо Al_2O_3 скорость выщелачивания элементов вновь возрастает. Максимальная гидролитическая устойчивость образцов стекол с 5 и 10 мол.% Fe_2O_3 , вероятно, объясняется формированием высокополимеризованной сетки из тетраэдров PO_4 , AlO_4 и октаэдров FeO_6 , являющихся структурообразующими узлами, вблизи которых локализованы ионы Na^+ и $Fe^{2+/3+}$, играющие роль модификаторов сетки. Этим отчасти объясняются близкие значения скоростей выщелачивания ионов из исследованных образцов стекла.

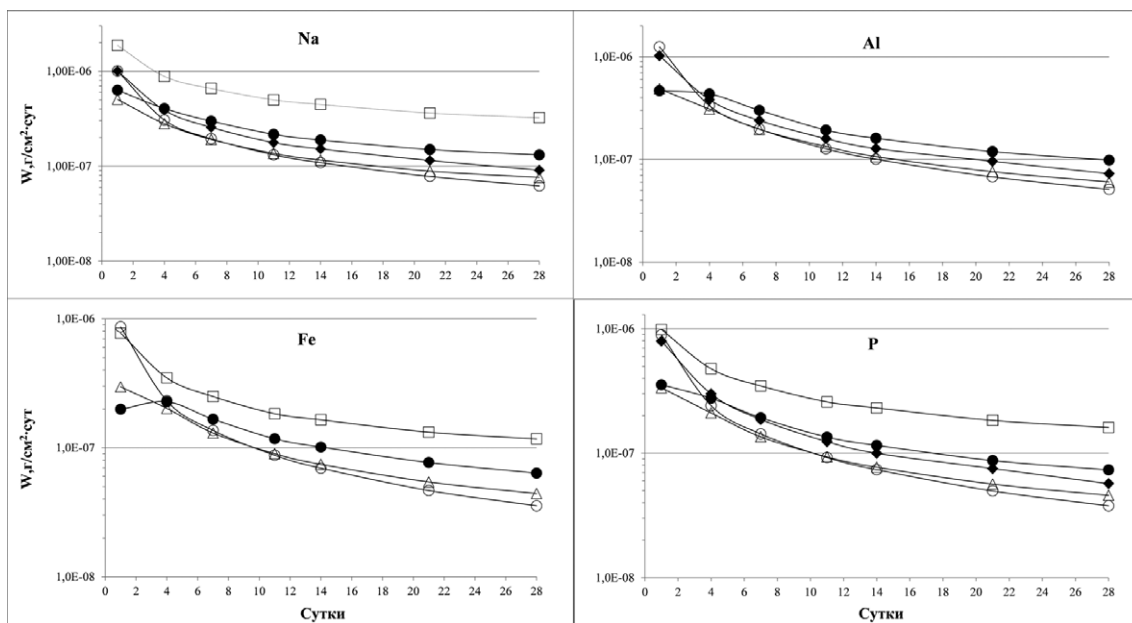


Рис. 2. Скорости выщелачивания (W) натрия, алюминия, железа и фосфора из закаленных образцов стекол серии I

Определенные нами скорости выщелачивания элементов стекол близки к ранее полученным в работе [4]. Все изученные образцы стекол имеют гидролитическую устойчивость, удовлетворяющую нормативным требованиям ГОСТ Р 50926-96 и НП 019-2000.

Облучение ускоренными электронами до дозы 10^7 Гр не вызывало разрушения структурной сетки стекол, усиления кристаллизации и заметного снижения их гидролитической устойчивости. Облучение стекол также не приводит к заметным изменениям ни в строении анионного мотива структурной сетки стекла, ни в состоянии окисления и координационном окружении ионов железа (по данным ЯГР спектроскопии [8]). Во всех исходных и облученных образцах преобладающей формой железа является Fe(III) в искаженном октаэдрическом кислородном окружении (60-75% от общего количества), остальное – Fe(II), преимущественно также в искаженном октаэдрическом окружении (25-40%). Небольшие изменения в ИК спектрах под действием облучения могут быть вызваны вариациями координационного состояния алюминия и накоплением продуктов радиолиза структурно-связанной и абсорбированной воды в стеклах [9,10].

Стекла для ВАО от переработки накопленного ОЯТ

ОЯТ и ВАО можно условно разделить на две группы: 1) собственно новые виды ОЯТ для будущих реакторов и 2) накопленные ОЯТ существующих или ранее эксплуатировавшихся реакторов, которые ранее не перерабатывались, но планируются к переработке в будущем. К числу первых относятся топливо высокотемпературных реакторов четвертого поколения, МОХ, плутониевое и нитридное топливо реакторов на быстрых нейтронах, которое планируется перерабатывать пироэлектрохимическим, гидрометаллургическим и комбинированными методами, а также по фторидной технологии. Ко вторым относятся оксидное, металлическое и карбидное топливо уран-

графитовых ректоров типа АМБ, которое представляет собой крупку, залитую металлическим кальцием, магнием или смесью магния с медью (подслоями) [11]. В перспективе возможна переработка топлива РБМК, размещенного в пристанционных хранилищах.

Номенклатура топливных композиций тепловыделяющих элементов (ТВЭЛ) АМБ весьма разнообразна. Металлическое ОЯТ представлено уран-молибденовым сплавом с магниевым подслоем (U + 3%Mo/Mg), (U+9%Mo/Mg) и уран-молибденовым сплавом с кальциевым подслоем (U + 9%Mo/Ca), оксидное ОЯТ с магниевым (UO₂+Mg) и медно-магниевым (UO₂ + Cu/Mg) подслоями. Присутствует и небольшое количество уран-карбидного топлива. С тех пор, как было принято решение о переработке накопленного ОЯТ ректоров АМБ, хранящегося в ПО «Маяк» и на Белоярской АЭС, были проведены организационно-методические, подготовительные и исследовательские работы [12-15]. Поскольку принято решение о совместной переработке ВАО ОЯТ АМБ и текущих ВАО, проводились исследования по остекловыванию с получением натрий-алюмофосфатных стекол подобных тем, которые получают в печи ЭП-500 на модельных рафинатах пяти составов, соответствующих пяти композициям топлива АМБ, указанным выше. В результате выявлено отрицательное влияние молибдена и меди на качество фосфатных стекол. Данные компоненты могут приводить к ликвации и/или кристаллизации стекол с выделением молибдатов и/или шпинелей, что отрицательно влияет на реологические свойства расплавов, химическую и термическую устойчивость конечных стеклопродуктов [14,15].

Химический состав ВАО является достаточно сложным и в несколько упрощенном виде приведен в табл. 1.

Как следует из рентгенодифракционных данных (рис. 3), закаленные образцы АМБ5 и АМБ11 являются практически стеклообразными, а АМБ2 и АМБ8 – частично закристаллизованы. Образцы, подвергшиеся отжигу, значительно сильнее закристаллизованы по сравнению с закаленными образцами (рис. 3). Основными кристаллическими фазами во всех закристаллизованных образцах являются различные модификации фаз ортофосфата алюминия - AlPO₄ (AP на рис. 3) – аналога SiO₂ и существующего в виде фаз изоструктурных кварцу, кристобалиту и тридимиту, а также сложные щелочные алюмофосфаты [16-18].

Таблица 1

Расчетные составы стекломатериалов

Оксиды	масс.%				мол.%			
	АМБ2	АМБ5	АМБ8	АМБ11	АМБ2	АМБ5	АМБ8	АМБ11
Na ₂ O	20,41	18,59	20,41	18,59	35,23	29,71	34,83	29,39
Cs ₂ O	3,88	3,88	3,88	3,88	1,47	1,36	1,46	1,35
P ₂ O ₅	52,30	50,49	52,30	50,49	39,42	35,23	38,97	34,86
Al ₂ O ₃	21,28	19,47	21,28	19,47	22,33	18,92	22,07	18,71
MoO ₃	1,94	1,94	0	0	1,44	1,34	0	0
CuO	0	0	1,94	1,94	0	0	2,58	2,39
MgO	0	5,43	0	5,43	0	13,34	0	13,20
ZrO ₂	0,07	0,07	0,07	0,07	0,06	0,05	0,06	0,05
La ₂ O ₃	0,10	0,10	0,10	0,10	0,03	0,03	0,03	0,03
Ce ₂ O ₃	0,03	0,03	0,03	0,03	0,01	0,01	0,01	0,01
Сумма	100,00	100,00	100,00	100,00	100,00	100,00	100,00	100,00

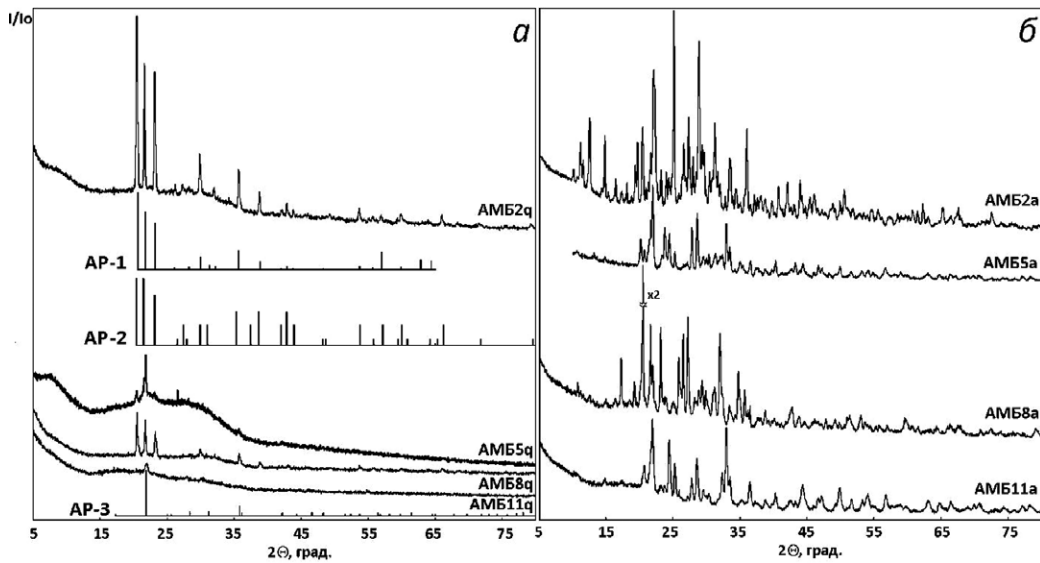


Рис. 3. Рентген-дифрактограммы образцов закаленных (а) и отожженных (б) стекол

На рис. 4 приведены зависимости скорости выщелачивания натрия в дистиллированную воду от времени испытаний, приведенные для закаленного и термообработанного (АМБ5) образцов, содержащих молибден и магний. Нормативное значение скорости выщелачивания для того и другого образца достигается на 7-е сутки испытаний. Но закаленное стекло показывает более низкие значения скорости выщелачивания в начальный период, испытаний, а термообработанное – в конечный. По-видимому, кристаллизация стекла данного состава, приводит к увеличению физической удельной поверхности, поэтому расчетная скорость выщелачивания, определяемая с учетом геометрической поверхности, становится выше. Возможно и другое объяснение – образование на поверхности образцов растворимых соединений, не определенных в рамках данного исследования. Далее, скорость выщелачивания натрия из термообработанного образца становится ниже, чем закаленного, вследствие более высокой, по сравнению со стеклофазой, химической устойчивости выделившихся Mg-содержащих кристаллических фаз [16].

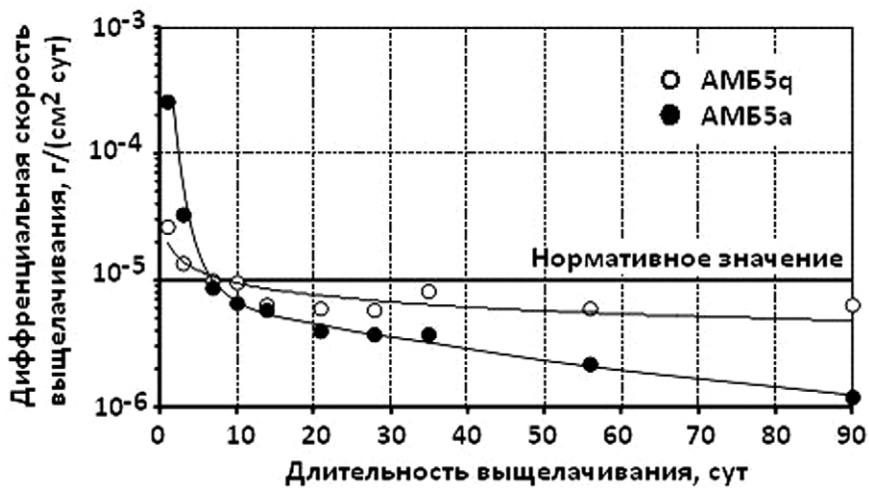


Рис. 4. Зависимость скорости выщелачивания натрия из закаленных (q) и отожженных (а) стекол АМБ5 от длительности испытаний

Стекла для ВАО от пиро(электро)химической переработки ОЯТ

ВАО от пиро(электро)химической переработки ОЯТ представляют собой отработанный щелочной электролит и фосфатный осадок с высокими концентрациями редкоземельных элементов. Для таких отходов больше подходят стекла на фосфатной основе [19].

На первом этапе было изучено поведение редкоземельных элементов (РЗЭ) в натрий-алюмофосфатных (НАФ) и натрий-алюмо-железо фосфатных (НАЖФ) стеклах, в которые вводили по 10 масс. % оксидов РЗЭ. По данным РФА НАФ- и НАЖФ-стекла, в которые было введено сверх 100 % по 10 % (массовое содержание) оксидов РЗЭ, после закалки остались рентгеноаморфными за исключением La-содержащего НАФ-стекла, в котором были обнаружены слабые следы кристаллизации фазы типа монацита LaPO_4 . Сравнение рентгенодифракционных картин отожженных НАФ- и НАЖФ-стекол показывает, что фазовый состав продуктов сильно зависит как от состава исходного стекла, так и от вида РЗЭ. НАФ-стекло после отжига частично кристаллизуется с выделением основной фазы фосфотридимита и примесной фазы натрий-алюмофосфата (NAP) $-\text{Na}_6\text{Al}_3(\text{P}_2\text{O}_7)_3$. В присутствии La_2O_3 эта фаза становится одной из двух основных, наряду с монацитом – фазой моноклинной структуры. Ce_2O_3 достаточно хорошо растворяется в стекле и, кроме фосфотридимита, никакие другие кристаллические фазы не выделяются.

Введение CeO_2 приводит к выделению при отжиге не только CeO_2 флюоритовой структуры, но и монацита, а также, в меньших количествах, NAP. В отожженных образцах, содержащих оксиды РЗЭ от празеодима до гадолиния, основной фазой является фосфотридимит. В образцах с оксидами Pr и Nd в сравнимых с ним количествах присутствует фаза монацита и примесь $\text{Na}_3\text{Al}_2(\text{PO}_4)_3$. В образцах с Sm, Eu и Gd дополнительной фазой является смешанный ортофосфат натрия и РЗЭ – $\text{Na}_3\text{RE}(\text{PO}_4)_2$.

Фазовый состав отожженных образцов, в состав которых вводили Eu в форме Eu^{3+} и Eu^{2+} , почти одинаков, за исключением присутствия в первом из них следов NAP-фазы: в обоих имеется небольшое количество $\text{Na}_3\text{Eu}(\text{PO}_4)_2$, что демонстрирует преобладание Eu(III).

От образцов с легкими РЗЭ по фазовому составу существенно отличаются образцы с тяжелыми РЗЭ (Tb, Dy, Ho, Er, Yb и Y). Во всех них доминирует фаза со структурой ксенотима X тетрагональной симметрии, дополнительной является фосфотридимит, а примесной – NAP-фаза (в четырех последних).

В Tb-содержащем образце в незначительных количествах присутствует фаза TbAlO_3 перовскитового типа. В отожженном Y-содержащем образце доминирует фаза ксенотима и присутствует примесь NAP-фазы (см. табл. 2).

Фазовый состав отожженных НАЖФ-образцов принципиально иной. Наряду со стеклофазой присутствуют только две кристаллические фазы: в образцах с легкими РЗЭ (La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu) – монацит и ортофосфат натрия-алюминия-железа, $\text{Na}_3(\text{Fe,Al})_2(\text{PO}_4)_3$, причем в образцах с La и Ce преобладает первая, а в остальных – вторая фаза. Заметной разницы в фазовом составе между образцами, в которые вводили Eu(III) и Eu(II), не найдено, что, вероятно, объясняется окислением Eu(II) до Eu(III) при данных условиях варки (в атмосфере воздуха). Образец с Gd после отжига остался аморфным. Во всех отожженных образцах, допированных тяжелыми РЗЭ и Y, ксенотим преобладает над $\text{Na}_3(\text{Fe, Al})_2(\text{PO}_4)_3$. Изучение влияния оксидов РЗЭ на структуру анионного мотива показало, что введение оксидов РЗЭ снижает степень полимеризации структурной сетки. В частности, полоса при $900 - 950 \text{ см}^{-1}$ антисимметричных валентных колебаний мостиков P–O–P вырождается в плечо. При этом соответствующего уменьшения интенсивности полосы при $700 - 750 \text{ см}^{-1}$ не наблюдается – ее интенсивность изменяется незначительно с одновременным уширением, что можно объяснить наложением еще одной полосы.

Согласно работе [18] значения волновых чисел валентных колебаний связей O–Ln–O для изолированных в матрицах оксидов лантанидов (Ce, Pr, Tb) находятся в пределах $710 - 760 \text{ см}^{-1}$, и гипотетическую полосу можно отнести к колебаниям этих связей.

В целом, при введении до ~10 % (массовое содержание) оксидов РЗЭ в НАФ- и НАЖФ-стекла их гидrolитическая устойчивость не изменяется, а нормированные скорости выщелачивания самих РЗЭ не превышают $(1-2) \times 10^{-6} \text{ г}/(\text{см}^2 \times \text{сут})$ из НАФ-стекол как полученных закалкой, так и медленно охлажденных (отожженных). Из более гидrolитически устойчивых НАЖФ-стекол скорости выщелачивания РЗЭ не более $\sim 2 \cdot 10^{-7} \times \text{г}/(\text{см}^2 \times \text{сут})$, т.е. примерно на порядок величины ниже, чем из НАФ, что хорошо согласуется с литературными данными [19].

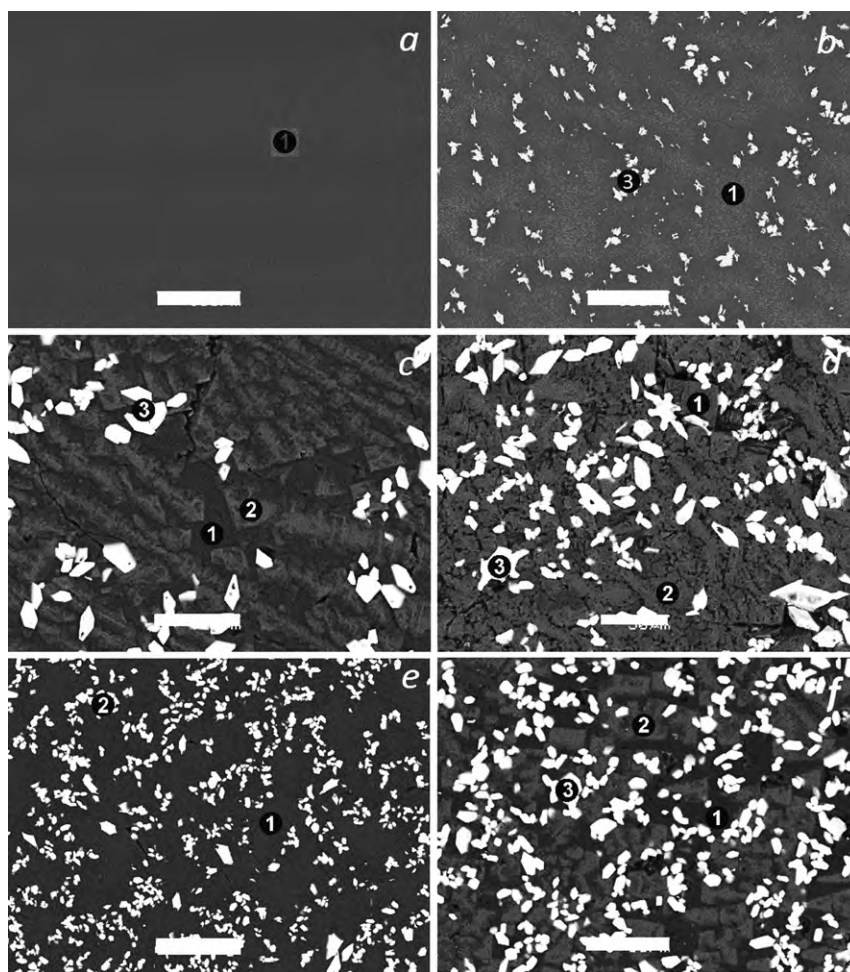


Рис. 5. СЭМ изображения закаленных (a, b, e) и отожженных (c, d, f) образцов стекломатериалов, содержащих 5 (a), 10 (b, c), 15 (d) и 20 (f) масс.% оксидов осадка.

*1 – стеклофаза, 2 – ортофосфат, 3 – монацит.
Метки, мкм: a, b – 100; c – f – 50*

Так же, как и для НАФ-стеклол отжиг НАЖФ-стеклол приводит к увеличению скоростей выщелачивания всех элементов в несколько раз, но из-за более высокой степени кристалличности и неоднородности образцов величина ошибки при измерении скоростей выщелачивания элементов из закристаллизованных образцов значительно возрастает, что делает интерпретацию данных более неопределенной.

Те же базовые композиции были выбраны и для иммобилизации имитатора фосфатного осадка. Образцы, содержащие 5 масс. % оксидов осадка и полученные закалкой расплавов были аморфны. При большем содержании осадка стекла частично или практически полностью кристаллизуются с выделением преимущественно фазы типа монацита в НАФ и ортофосфата, по рентгеновским данным близкого к $\text{Na}_3\text{Fe}_2(\text{PO}_4)_3$,

Как закаленные, так и отожженные, стекломатериалы имеют высокую гидrolитическую устойчивость – скорости выщелачивания макро-элементов (Na, Al, Fe, P) находятся на уровне 10^{-5} - 10^{-7} , а РЗЭ – ниже 10^{-5} г/(см²×сут).

Таблица 2

Содержание компонентов в НАЖФ стеклах (масс.%)

№	Оксид U	Состав	Na ₂ O	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	P ₂ O ₅	UO ₂	UO ₃	SiO ₂	Сумма
2-1	—	расчет	23,0	9,5	14,8	52,7	—	—	—	100,0
		анализ	23,3	8,9	14,8	50,8	—	—	2,0	99,8
2-2	UO ₂	расчет	22,7	9,4	14,7	52,2	1,0	—	—	100,0
		анализ	20,9	9,0	15,1	52,1	1,1	—	2,1	100,3
2-3	UO ₂	расчет	21,9	9,0	14,1	50,2	4,8	—	—	100,0
		анализ	19,6	8,4	14,5	50,3	5,0	—	2,3	100,1
2-4	UO ₃	расчет	21,9	9,0	14,1	50,2	—	4,8	—	100,0
		анализ	20,8	8,5	14,2	49,2	—	5,2	2,1	100,0
2-5	UO ₃	расчет	20,9	8,6	13,5	47,9	—	9,1	—	100,0
		анализ	19,5	7,8	13,6	47,6	—	9,9	1,7	100,1
2-6	UO ₃	расчет	15,3	6,3	9,9	35,1	—	33,4	—	100,0
		анализ	14,2	5,4	10,2	33,7	—	34,2	2,6	100,3
2-7	UO ₃	расчет	13,1	5,4	8,5	30,1	—	42,9	—	100,0
		анализ	13,0	5,6	8,6	30,3	—	41,7	0,9	100,1
2-8	UO ₃	расчет	11,4	4,8	7,4	26,4	—	50,0	—	100,0
		анализ	11,1	5,1	7,6	26,0	—	49,2	0,9	99,9

Иммобилизация урана в фосфатных стеклах

Уран, в тех или иных количествах, часто присутствует в РАО. Кроме того, мультивалентное состояние урана (от 3+ в сильновосстановительных до 6+ в окислительных условиях) позволяет имитировать поведение других актинидов с переменной валентностью (Np, Pu). В экспериментах использовали те же НАФ и НАЖФ стекла, что и для РЗЭ, в которые вводили до 100 масс. % оксидов урана (UO₃) сверх 100 масс.%. После закалки расплавов все полученные образцы стекол были визуально однородны и прозрачны в тонком слое, а их фактические составы близки к расчетным и отличаются от них присутствием до 2,8 масс. % SiO₂, перешедшим в расплав из материала тиглей (табл. 2).

ФПИК спектры исходных и допированных ураном стекол (рис. 6) состоят из полос ИК поглощения в одних и тех же диапазонах: 400-700 см⁻¹, 700-800 см⁻¹, 800-1000 см⁻¹, 1000-1150 см⁻¹, 1150-1300 см⁻¹, 1600-1700 см⁻¹ и 3200-3800 см⁻¹. Первые 5 полос обусловлены колебаниями связей в анионном мотиве структурной сетки стекол, остальные две – деформационными и валентными колебаниями связей в молекулах абсорбированной и структурно-связанной воды.

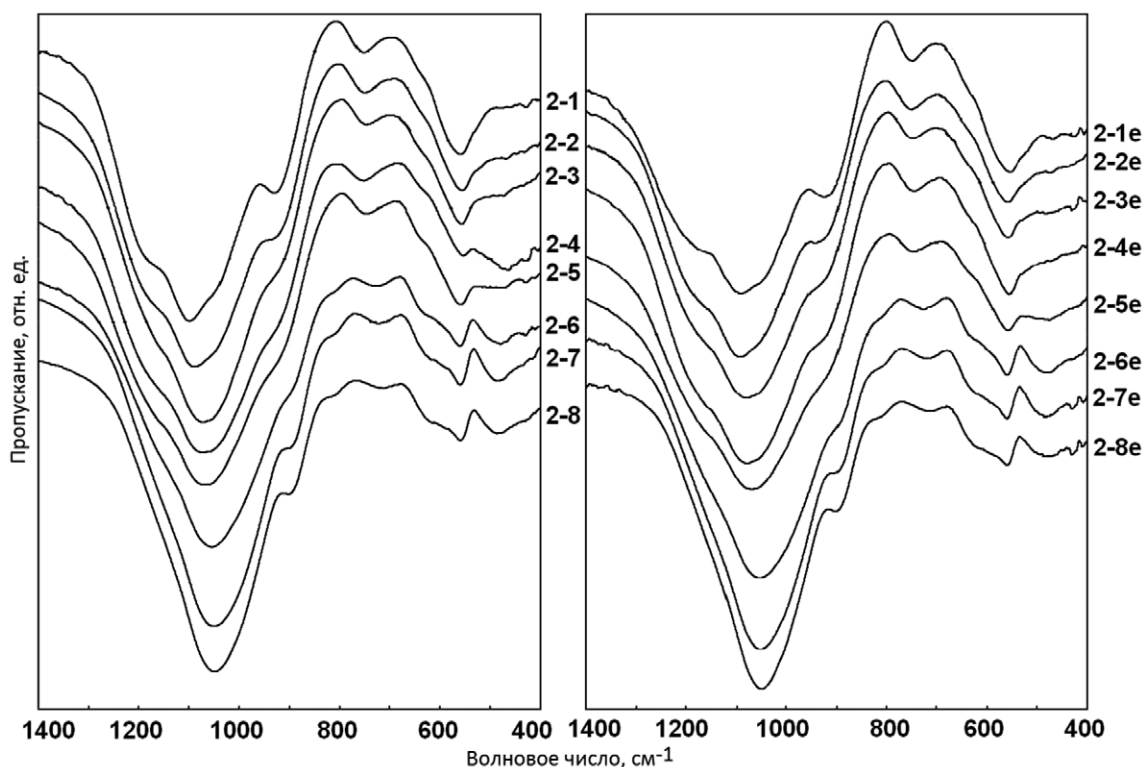


Рис. 6. ФПИК спектры стекол (мол.%) 40 Na₂O, 10 Al₂O₃, 10 Fe₂O₃, 40 P₂O₅ с добавками оксидов урана до (слева) и после облучения до дозы 1 МГр (справа).

Номера стекол даны в табл. 2

При введении в стекла 1 и 2 оксидов урана в их ФПИК спектрах происходят следующие изменения. С увеличением содержания как UO₂, так и UO₃, соотношение интенсивностей полос с максимумами около 1170 см⁻¹ и 1100 см⁻¹ изменяется в пользу последней и в стеклах, содержащих 75 и 100 масс.% (сверх 100%) или по анализу ~41 и ~48 масс.% UO₃ полоса ~1170 см⁻¹ практически исчезает и остается полоса с максимумом при 1070-1080 см⁻¹, обусловленная преимущественно колебаниями связей O-P-O в ортофосфатных группах (Q⁰) PO₄. Полосы 880-1000 см⁻¹ и 700-800 см⁻¹ уменьшаются по интенсивности до содержания UO₃ 10 масс.% (сверх 100%) (или ~10 масс.% UO₃ по анализу), а их максимумы смещаются в сторону больших волновых чисел, но при дальнейшем введении UO₃ (до 100 масс.% сверх 100% или ~48 масс.% по анализу) положение и интенсивность полосы 850-1000 см⁻¹ восстанавливается до начального уровня, полосы 700-800 см⁻¹ продолжает снижаться. Таким образом, при высоких концентрациях оксидов урана в полосу 800-1000 см⁻¹ вносят вклад две дополнительные полосы: ~945 см⁻¹, 880 см⁻¹ и ~810 см⁻¹, которые можно отнести к колебаниям связей O=U^{VI}=O и O=U^V-O, соответственно. В диапазоне ниже 700 см⁻¹ с увеличением содержания оксидов урана появляются и растут по интенсивности полосы с максимумами около 630-650 см⁻¹ и 500 см⁻¹, которые можно отнести к колебаниям связей O-Al-O в октаэдрах AlO₆ и деформационным колебаниям орто-групп PO₄ (Q⁰). По данным ИК и ЯГР спектроскопии после облучения ускоренными электронами до дозы 1 МГр заметных изменений в структуре стекол не наблюдалось (рис. 6) [21-23].

По данным рентгеноабсорбционной спектроскопии [23,24] в стеклах преобладает U(VI) в форме уранил-ионов. Компьютерное моделирование показывает присутствие в структуре стекла, содержащего 1 масс.% UO₂, одного расстояния U-O (~2,25 Å) при значении КЧ близком к 6. Это соответствует урану, преимущественно в форме U(IV) в слабо искаженном октаэдрическом кислородном окружении. В остальных стеклах первая координационная сфера урана расщеплена на две подсферы (рис. 7 и табл. 3). В стекле, в которое было введено 5 масс.% UO₂ (сверх 100%) первая координационная сфера расщеплена на 2 компонента – ~1,74 Å с КЧ ≈ 1 и ~2,23 Å с КЧ ≈ 5,5 при суммарном КЧ ≈ 6. По-видимому, в этом стекле U(VI) и U(V) присутствуют в сравнимых количествах и оба находятся в искаженном октаэдрическом кислородном окружении.

При введении в натрий-алюмо-железо-фосфатное стекло 5 масс.% UO₃ (сверх 100%) ФТ EXAFS спектра L₃ края поглощения урана в данном стекле (рис. 7, справа) показывает наличие в первой сфере двух расстояний (~1,68 и ~2,24 Å) при суммарном координационном числе ~5,5.

Низкие значения расстояния U-O и КЧ в первой подсфере могут указывать на то, что у части октаэдров UO_6 один ион кислорода отсутствует и они трансформируются в тетрагональные пирамиды с КЧ=5. Тогда, наряду с типичными уранильными комплексами, примерно в тех же количествах присутствует U(V) в кислородном окружении с конфигурацией тетрагональной пирамиды.

При дальнейшем увеличении концентрации UO_3 (10 и 50 масс. % сверх 100%) в структуре стекла продолжают сосуществовать U(VI) и U(V) в виде уранильных комплексов UO_2^{2+} и UO_2^+ . Относительно низкое значение суммарного КЧ урана по кислороду в первой сфере, особенно в стекле 2-6 (табл. 3) указывает на сильное разупорядочение локального окружения урана. Как видно из рис. 7, если спектр XANES L_3 края поглощения в стекле 2-5 подобен спектрам референтных урансодержащих стекол, то для стекла 2-6 он подобен таковому для UO_3 и, следовательно, в нем практически весь уран находится в виде U(VI).

Вторая координационная сфера урана выражена достаточно слабо за исключением стекла, содержащего ~33 масс.% UO_3 (рис. 7, справа), то есть, в стеклах, содержащих менее ~10 масс.% оксидов урана, он распределен равномерно и не образует кластеров. Для всех стекол расстояние от иона урана до ближайшего структурообразующего иона составляет около 3 Å. Таким ионом, скорее всего, является $^{IV}P^{5+}$ и, как уран-кислородные, так и фосфор-кислородные полиэдры претерпевают значительную деформацию.

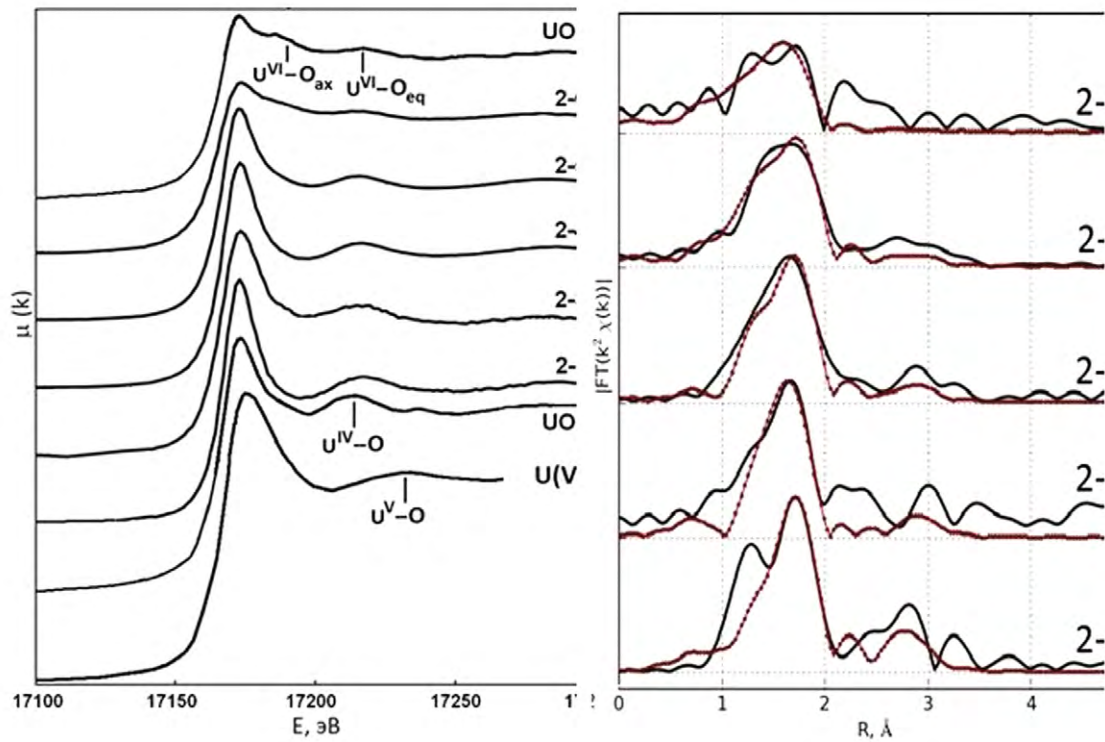


Рис. 7. Спектры XANES и Фурье-трансформанты спектров EXAFS L_3 края поглощения урана в стеклах (мол.% 40 Na_2O , 10 Al_2O_3 , 10 Fe_2O_3 , 40 P_2O_5 с оксидами урана после закалки (номера стекол даны в табл. 2)

Таблица 3

Результаты подгонки параметров 1 и 2 координационных сфер урана

Образец	R1-1(U-O)	N1-1(U-O)	R1-2(U-O)	N1-2(U-O)	R2(U-Me)	N2(U-Me)
2-2	—	—	2.25(2)	5.8(9)	2.89(5)	2.4(13)
2-3	1.74(9)	0.7(9)	2.21(3)	5.3(9)	3.00(7)	1.6(15)
2-4	1.68(7)	0.6(5)	2.24(2)	4.8(6)	2.94(6)	1.1(9)
2-5	1.73(2)	1.3(3)	2.26(1)	4.4(4)	2.92(7)	0.8(6)
2-6	1.75(3)	1.4(5)	2.19(4)	3.1(7)	3.08(6)	0.0(4)

Результаты XAFS исследований хорошо согласуются с данными РФЭ спектроскопии [25].

На рис.8 приведены значения, соответственно, скорости и степени выщелачивания урана и для сравнения структурообразующих элементов (Na, Al, Fe, P) и РЗЭ (La, Ce, Eu, Gd) из стекол составов (мол.%): 40 Na₂O, 20 Al₂O₃, 40 P₂O₅ и 40 Na₂O, 10 Al₂O₃, 10 Fe₂O₃, 40 P₂O₅. Видно, что ни в одном случае скорость выщелачивания элементов не превышает допустимых по ГОСТ Р 52126-2003 значений [10⁻⁵ г/(см²сут)]. Даже при введении до 50 масс.% UO₃ скорости выщелачивания всех элементов, включая уран, сохраняются на уровне 10⁻⁶-10⁻⁷ г/(см²сут) [26].

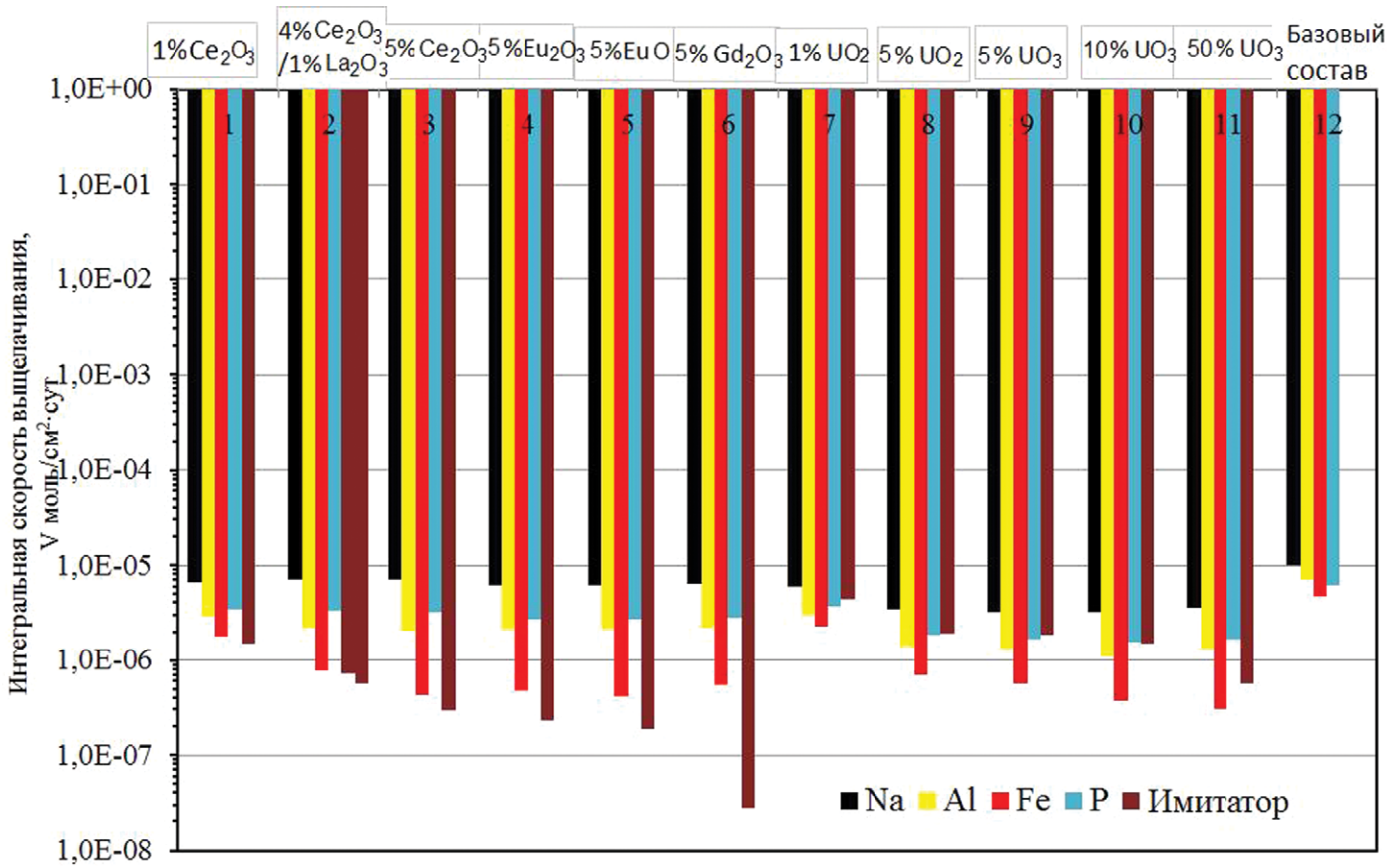


Рис. 8. Влияние добавок оксидов РЗЭ и урана (имитаторов ВАО) на гидролитическую устойчивость стекла (мол.% 40 Na₂O, 10 Al₂O₃, 10 Fe₂O₃, 40 P₂O₅)

Иммобилизация минорных актинидов в фосфатных стеклах

Под минорными актинидами обычно понимают америций и кюрий. Мы изучали также специацию нептуния и плутония в фосфатных стеклах. Последний в остаточных количествах обычно присутствует в ВАО после его выделения в Пурекс-процессе.

По данным РФЭ спектроскопии (рис. 9) в НАФ и НАЖФ стеклах нептуний, введенный в количестве 0,5 масс.%, присутствует преимущественно в виде Np(IV) в форме ионов Np⁴⁺ (70-80% от общего содержания) и меньшего количества Np(V) в форме ионов нептунила NpO₂⁺. Плутоний, введенный в том же количестве, в НАФ и НАЖФ стеклах присутствует как Pu(IV) и Pu(III) в виде ионов Pu⁴⁺ и Pu³⁺ в кислородном окружении с N ~ 6-8 и, вероятно Pu(V) в форме плутонила PuO₂⁺ с N ~ 5.5-6.0 [27-29]. Наиболее выщелачиваемым элементом из стекол обоих типов является нептуний, часть которого присутствует в виде высокомолекулярного иона нептунила NpO₂⁺ (рис. 10) [27,28].

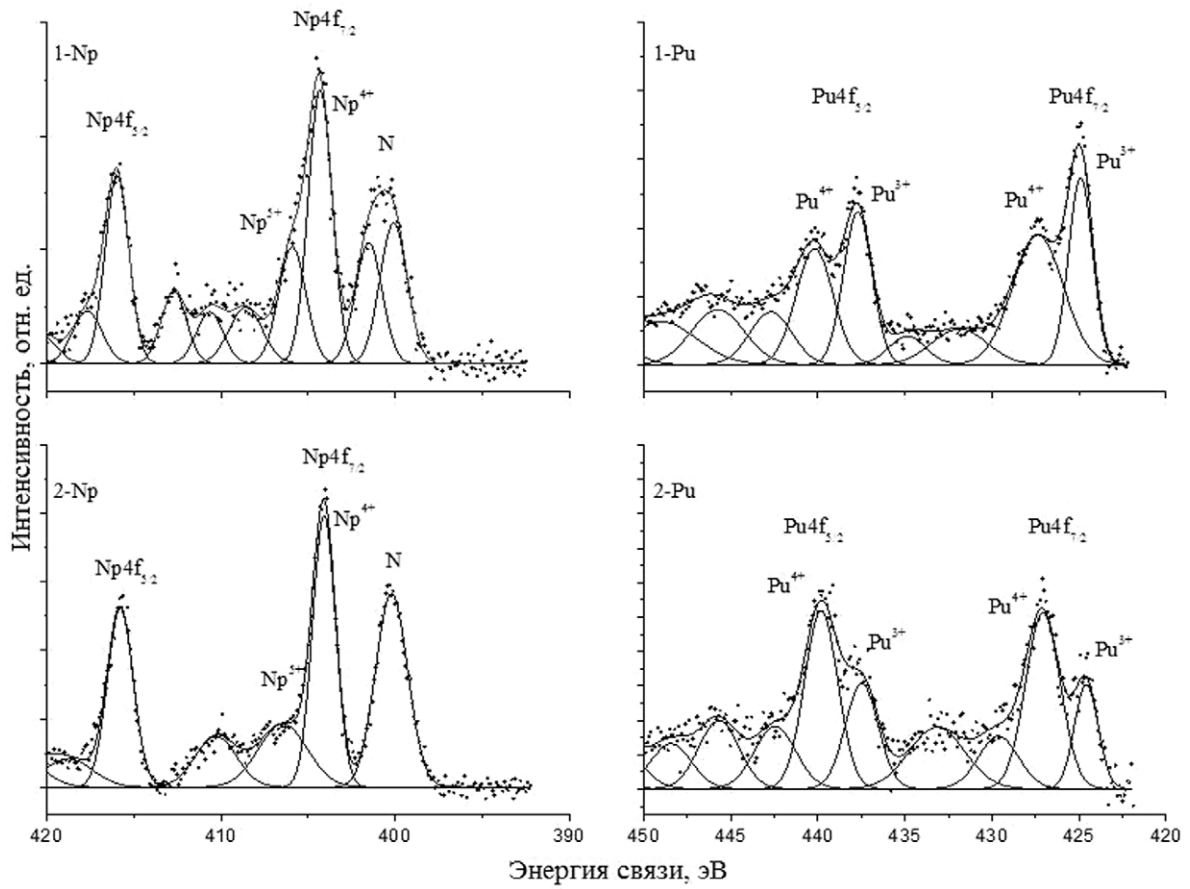


Рис. 9. РФЭС спектры с вычтенным фоном $Np4f$ - и $Pu4f$ -электронов изученных стекол. 1 – НАФ, 2 – НАЖФ

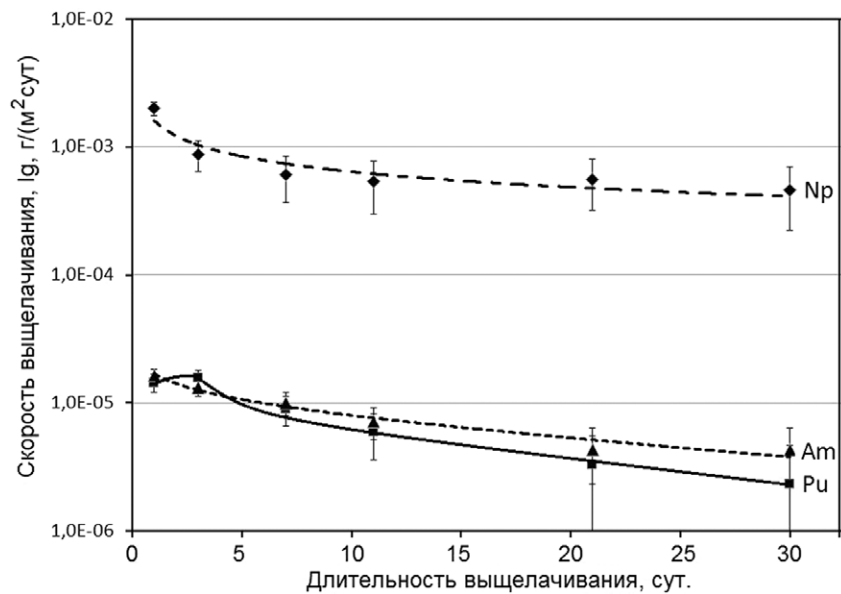


Рис. 10. Зависимости скоростей выщелачивания непутия, плутония и примесного америция из НАФ и НАЖФ стекол от длительности выщелачивания

Боросиликатные стекла для иммобилизации ВАО от переработки ОЯТ ВВЭР-1000

Боросиликатные стекломатериалы, содержащие до 35 масс.% имитатора ВАО, были синтезированы из реактивов квалификации не ниже «ч» в корундовых тиглях при температуре 1150 °С (выдержка 1 час). Порцию каждого расплава выливали на металлический лист, остальное охлаждали в отключенной печи. По данным рентгенофазового анализа все материалы, полученные закалкой расплавов, были рентгеноаморфны, а электронно-микроскопическое исследование показало их гомогенность.

По данным Фурье-преобразовательной инфракрасной (ФПИК) спектроскопии при увеличении содержания имитатора ВАО от 20 до 35 масс.% максимумы поглощения в диапазонах 850-1250 см⁻¹ и 700-800 см⁻¹ незначительно смещаются в сторону меньших волновых чисел, указывая на повышение доли тетраэдров SiO₄ с меньшим числом мостиковых ионов кислорода, что указывает на общее понижение степени связности структурной сетки стекла. Наличие полос с максимумами около 1400 см⁻¹, 1270 см⁻¹ и 700 см⁻¹ демонстрирует наличие тригонально-координированного бора, преимущественно в составе сложных боратных групп, содержащих и тетраэдрически-координированный бор. Полосы колебаний в единицах BO_{4/2}, встроенных в кремнекислородные цепи, не различаются на фоне интенсивных полос колебаний в кремнекислородных группах в области 1000-1100 см⁻¹ и о наличии таких единиц можно судить только предположительно.

Тем не менее, несмотря на невысокую степень связности структурной сетки стекла, гидrolитическая устойчивость стекломатериалов удовлетворяет требованиям ГОСТ Р 52126-2003, предъявляемым к отвержденным ВАО (<1·10⁻⁵ г/см²сут) [30].

Составы стекломатериалов с датолитом и бентонитом в качестве флюсов были выбраны исходя из общих соображений о влиянии отдельных оксидов на свойства стекол, прежде всего температуру варки, вязкость и гидrolитическую устойчивость, а также мирового опыта, в частности, касающегося применения датолитового концентрата и бентонита в качестве стеклообразующих добавок при остекловывании РАО [1].

Все стекла, полученные с использованием датолитового концентрата и бентонита, содержавшие от 20 до 40 масс.% оксидов ВАО, были хорошо проварены и осветлены. Примесь щелочно-молибдатно-хроматной фазы желто-оранжевого цвета присутствовала только в образцах с высоким содержанием ВАО (2-35 и 2-40). Расплавы легко сливались, что говорит о достаточно низкой вязкости при температурах варки (1100-1200°С), следовательно, проблем со сливом расплавов из плавителя в канистры не ожидается. Медленно охлажденные (отожженные) образцы, содержащие 30 масс.% ВАО и более были частично закристаллизованы и содержали заметное количество желтой фазы. Закаленные образцы были образованы матричной стеклофазой и распределенными в ней индивидуальными и агрегированными кристаллами оксидами благородных металлов (рис. 11, слева). При этом, образуются агрегаты как чистого RuO₂, так и микрокристаллов RuO₂ и Ag₂O. Состав матричного стекла достаточно хорошо выдержан по макрокомпонентам, хотя по некоторым микрокомпонентам (Mg, Cr, Rb, Y) наблюдается заметный разброс, что может быть связано с неполной гомогенизацией. При высоких концентрациях оксидов ВАО в стеклах появляется фаза бритолита (рис. 11). Она наблюдается в виде удлинённых кристаллов, имеющих почти белый цвет на СЭМ изображении в обратно-рассеянных электронах (рис. 11, справа) и содержит обычный для нее набор элементов: Ca, Si и PЗЭ, а также примесь натрия. Ее состав пересчитывается на формулу, типичную для фазы бритолита: Na_{1,00}Ca_{4,02}Y_{0,33}Ce_{0,05}Nd_{3,64}Gd_{0,17}Si_{6,79}O_{24,39}.

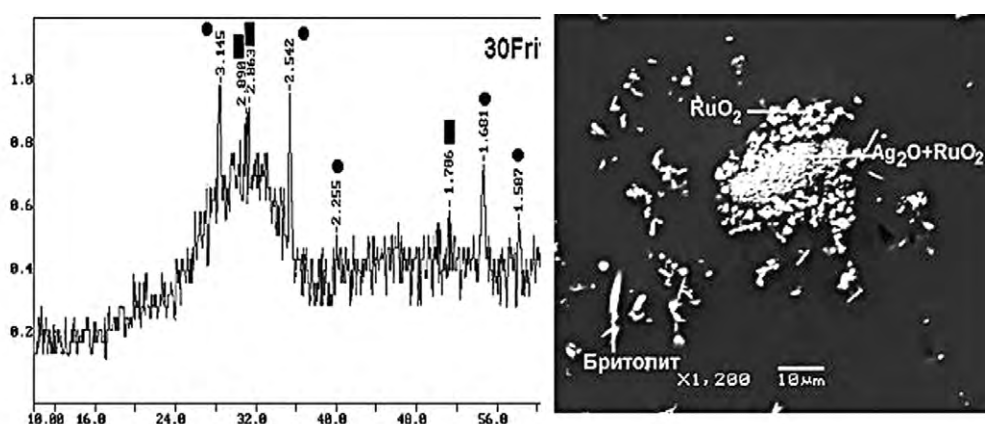


Рис. 11. СЭМ изображение в обратно-рассеянных электронах стекла с 35 масс.% оксидов ВАО

Стекла, содержащие до 30 масс.% имитатора оксидов ВАО обладают высокой гидролитической устойчивостью – при испытаниях по ГОСТ Р 52126-2003 скорости выщелачивания ионов Na не превышают по порядку величины 10^{-6} г/(см²сут) на 28 сутки контакта с дистиллированной водой.

Заключение

Разработаны и охарактеризованы различными структурными физико-химическими методами натрий-алюмофосфатные, натрий-алюмо-железо-фосфатные и боросиликатные стекла для иммобилизации ВАО от переработки ряда видов ОЯТ, «исторических» накопленных ВАО, урансодержащих отходов и минорных актинидов. Определен фазовый состав закаленных и отожженных образцов, изучено состояние окисления и координационное окружение элементов ВАО, в том числе актинидов, в стеклах, измерена их гидролитическая устойчивость. Показано, что разработанные нами стекла обладают высокой гидролитической устойчивостью, удовлетворяющей нормативным требованиям.

Благодарности

Автор искренне признателен всем, кто принимал участие в данных исследованиях, прежде всего акад. РАН Б.Ф. Мясоедову и к.х.н. О.И. Стефановской, а также М.И. Кадыко, д.х.н. А.А. Ширяеву, М.В. Скворцову (все ИФХЭ РАН), Б.С. Никонову (ИГЕМ РАН), С.Е. Винокурову, С.С. Данилову (ГЕОХИ РАН), член-корр. РАН С.Н. Калмыкову, Я.С. Глазковой (МГУ им. М.В. Ломоносова), д.т.н. Ю.А. Тетерину и его сотрудникам, сотрудникам станции «Структурное материаловедение» (НИЦ Курчатовский институт) и всем другим, кто так или иначе помогал в работе.

Список литературы

1. С.А. Дмитриев, С.В. Стефановский. Обращение с радиоактивными отходами. М.: ПХТУ им. Д.И. Менделеева, 2000.
2. R. Didierlaurent, E. Chauvin, J.F. Hollebecque, J. Lacombe, C. Mesnil, C. Veyer, O. Pinet. World premiere industrial vitrification of high level liquid waste produced by uranium/molybdenum fuel reprocessing in La Hague's cold crucible melter // WM2014 Conference, March 2 – 6, 2014, Phoenix, Arizona, USA. 2014. 14035.
3. С.А. Дубков, М.Б. Ремизов. Рождение и становление отечественной технологии остекловывания высокоактивных отходов в печах прямого электрического нагрева, ФГУП ПО Маяк, Озерск, 2015.
4. С.Н. Озиранер, А.А. Минаев, Д.Г. Кузнецов, Н.П. Прохорова. Сравнение некоторых свойств фосфатных и силикатных стекол, предназначенных для остекловывания алюмосодержащих радиоактивных отходов // Исследования в области обезвреживания жидких, твердых и газообразных радиоактивных отходов, и дезактивации загрязненных поверхностей // Материалы IV научно-технической конференции СЭВ, Москва 22-23 декабря 1976. М.: Атомиздат, 1978. С. 94-102.
5. Chemical Durability and Related Properties of Solidified High-Level Waste Forms. Techn. Rep. Ser. No.257. Vienna, IAEA, 1985.
6. С.В. Стефановский, О.И. Стефановская, С.Е. Винокуров, С.С. Данилов, Б.Ф. Мясоедов. Фазовый состав, структура и гидролитическая устойчивость стекол системы Na₂O-Al₂O₃-(Fe₂O₃)-P₂O₅ при замещении Al₂O₃ на Fe₂O₃ // Радиохимия. 2015. Т.57, N4. С. 295-301.
7. S.V. Stefanovsky, O.I. Stefanovsky, M.I. Kadyko, I.A. Presnyakov, B.F. Myasoedov. The Effect of Fe₂O₃ Substitution for Al₂O₃ on the Phase Composition and Structure of sodium-aluminum-iron Phosphate Glasses // J. Non-Cryst. Solids. 2015. V.425. P. 138-145.
8. Я.С. Глазкова, С.Н. Калмыков, И.А. Пресняков, А.В. Соболев, О.И. Стефановская, С.В. Стефановский. Состояние окисления и координация железа в натрий-алюмо-железофосфатных стеклах и их гидролитическая устойчивость // Докл. Акад. Наук. 2015. Т. 463. №1. С. 58-62.
9. S.V. Stefanovsky, I.A. Presnyakov, A.V. Sobolev, I.A. Glazkova, M.I. Kadyko, O.I. Stefanovsky. The Effect of Electron Irradiation on the Structure and Iron Speciation in Sodium Aluminum (Iron) Phosphate Glasses // J. Nucl. Mater. 2016. V.476. P. 262-269.
10. С.В. Стефановский, И.А. Пресняков, А.В. Соболев, М.И. Кадыко, О.И. Стефановская. Влияние облучения ускоренными электронами на состояние окисления железа и структуру натрий-алюмо-железо-фосфатных стекол // Физ. хим. обраб. матер. 2016, №6. С. 25-41.
11. А.С. Кудинов, Н.Д. Голецкий, Б.Я. Зильберман, Ю.С. Федоров, С.А. Родионов, А.А. Мурзин, Д.Н. Рябков, Л.В. Сытник, А.Ю. Шадрин, В.С. Ермолин, А.Н. Машкин, М.В. Логунов, Д.Н. Колупаев. Комплектация отработавшего ядерного топлива АМБ для переработки в ПО «Маяк» // Атомная энергия. 2013. Т.114. С. 276-285.

12. S.N. Kirillov, D.N. Kolupaev, M.V. Logunov, V.S. Ermolin, Yu.S. Fedorov, S.A. Rodionov, B.Ya. Zilberman, N.D. Goletskiy, A.S. Kudinov, A.Yu. Shadrin, T.V. Smelova, E.G. Kudryavtsev, A.V. Khaperskaya. Possibility of Various Types SNF Reprocessing at the Mayak Exemplified with AMB SNF // *Proc. Chem.* 2012. V.7. P. 98-103.
13. D.V. Zverev, S.N. Kirillov, K.N. Dvoeglazov, A.Yu. Shadrin, M.V. Logunov, A.N. Mashkin, O.V. Schmidt, L.V. Arseenkov. Possible Options for Uranium Carbide SNF Processing // *Proc. Chem.* 2012. V.7. P. 116-122.
14. Е.А. Беланова, М.Б. Ремизов, А.С. Алой, Т.И. Кольцова. Исследование возможности иммобилизации молибден- и магнийсодержащих высокоактивных отходов от экстракционной переработки ОЯТ АМБ в фосфатное стекло // *Вопр. радиац. безоп.* –2012. № 4. С. 27-37.
15. Е.А. Беланова, М.Б. Ремизов, А.С. Алой, Т.И. Кольцова. Исследование влияния молибдена, меди и магния на свойства натрийалюмофосфатных стекол // *Вопр. радиац. безоп.* 2014, №2. С. 3-14.
16. С.В. Стефановский, М.Б. Ремизов, Е.А. Беланова, П.В. Козлов, Р.А. Макаровский, О.И. Стефановская, Б.С. Никонов. Фазовый состав, структура и гидролитическая устойчивость фосфатных стекломатериалов для иммобилизации жидких высокоактивных отходов с высоким содержанием элементов группы железа // *Физ. хим. стекла.* 2015. Т. 41, №5. С. 661-674.
17. С.В. Стефановский, О.И. Стефановская, М.И. Кадыко, М.Б. Ремизов, П.В. Козлов, Е.А. Беланова, Б.Ф. Мясоедов. Фазовый состав и структура стекломатериалов на натрий-алюмофосфатной основе в зависимости от условий их синтеза // *Доклады Академии Наук.* 2016. Т.466, №5. С. 563-568.
18. Y.S. Glazkova, S.N. Kalmykov, I.A. Presnyakov, A.V. Sobolev, O.I. Stefanovskaya, S.V. Stefanovsky, M.B. Remizov, P.V. Kozlov, E.A. Belanova. Oxidation State and Local Environment of Iron and Hydrolytic Stability of Multicomponent Aluminum-Iron-Phosphate Glasses for Immobilization of High-Level Waste // *Inorg. Mater.: Appl. Res.* 2016. V.7. N3. P. 444-452.
19. Ю.Г. Лавринович, А.В. Бычков. Обращение с отходами неводных методов переработки отработанного ядерного топлива. Димитровград, НИИАР, 2012.
20. S.V. Stefanovsky, O.I. Stefanovsky, M.I. Kadyko, B.S. Nikonov. Sodium aluminum-iron phosphate glasses and glass-crystalline materials for immobilization of lanthanide oxide wastes from pyrochemical reprocessing of spent nuclear fuel // *J. Nucl. Mater.* 2018. V.500. P. 153-165.
21. S.V. Stefanovsky, O.I. Stefanovsky, M.I. Kadyko. FTIR and Raman Spectroscopic Study of Sodium Aluminophosphate and Sodium Aluminum-Iron Phosphate Glasses Containing Uranium Oxides // *J. Non-Cryst. Solids.* 2016. V. 443. P. 192-198.
22. С.В. Стефановский, О.И. Стефановская, М.И. Кадыко, Б.С. Никонов, Б.Ф. Мясоедов. Влияние способа термообработки и облучения на структуру анионного мотива и кристаллизацию урансодержащих фосфатных стекол // *Радиохимия.* 2016. Т.58, №6. С. 561-567.
23. С.В. Стефановский, О.И. Стефановская, В.Ю. Мурзин, А.А. Ширяев, Б.Ф. Мясоедов. Состояние окисления и координационное окружение урана в натрий-алюмо-железофосфатных стеклах // *Доклады Академии Наук.* 2016. Т. 468, №2. С. 179-182.
24. С.В. Стефановский, А.А. Ширяев, Ю.А. Тетерин, С.Н. Калмыков, Я.С. Глазкова. Состояние окисления и координационное окружение железа и урана в натрийалюможелезофосфатных стеклах // *Радиохимия.* 2017. Т. 59, №6. С. 495-501.
25. K.I. Maslakov, Y.A. Teterin, S.V. Stefanovsky, S.N. Kalmykov, A.Y. Teterin, K.E. Ivanov. XPS Study of Uranium-Containing Sodium-Aluminum-Iron-Phosphate Glasses // *J. Alloys Compd.* 2017. V. 712. P. 36-43.
26. С.С. Данилов, С.Е. Винокуров, С.В. Стефановский, Б.Ф. Мясоедов. Гидролитическая устойчивость урансодержащих натрийалюмо(железо)фосфатных стекол // *Радиохимия.* 2017. Т.59, №3. С. 226-229.
27. С.С. Данилов, С.В. Стефановский, О.И. Стефановская, С.Е. Винокуров, Б.Ф. Мясоедов, Ю.А. Тетерин. Алюмо(железо)фосфатные стекла, содержащие редкоземельные и трансурановые элементы: фазовый состав, состояние окисления Np и Pu, гидролитическая устойчивость // *Радиохимия.* 2018. Т.60, №4. С. 371-375.
28. С.В. Стефановский, К.И. Маслаков, Ю.А. Тетерин, С.Н. Калмыков, С.С. Данилов, А.Ю. Тетерин, К.Е. Иванов. Состояние окисления нептуния и плутония и их выщелачивание из натрий-алюмо-(железо)-фосфатных стекол // *Доклады АН.* 2018. Т. 478, №2. С. 1-4.
29. K.I. Maslakov, Yu.A. Teterin, S.V. Stefanovsky, S.N. Kalmykov, A.Yu. Teterin, K.E. Ivanov, S.S. Danilov. XPS Study of Neptunium and Plutonium Doped Iron-Bearing and Iron-Free Sodium-Aluminum-Phosphate Glasses // *J. Non-Cryst. Solids.* 2018. V.482. P. 23-29.
30. S.V. Stefanovsky, M.V. Skvortsov, O.I. Stefanovsky, B.S. Nikonov, I.A. Presniakov, I.S. Glazkova. Preparation and Characterization of Borosilicate Glass Waste Form for Immobilization of HLW from WWER Spent Nuclear Fuel Reprocessing // *MRS Advances.* 2017. V.2, N11. P. 583-589.
31. S.V. Stefanovsky, M.V. Skvortsov, O.I. Stefanovsky, B.S. Nikonov, S.N. Kalmykov, I.A. Presniakov, I.S. Glazkova. Development and Characterization of Glassy Materials for HLW Immobilization with Datolite and Bentonite as Glass Forming Additives // *MRS Advances.* 2017. V.2, N10. P. 569-575.

УДК 621.039.73

Проблемы обращения с тритийсодержащими водными отходами

Магомедбеков Э.П., Растунова И.Л.

Российский химико-технологический университет им. Д.И. Менделеева

Москва, 125047, Миусская пл., 9

e-mail: eldar@rctu.ru

В статье представлен анализ литературных данных и собственных исследований, посвященных проблемам образования трития на ядерных энергетических установках различного типа, способам его извлечения и хранения, а также сравнительный анализ нормативных документов, регламентирующих поступление трития в окружающую среду. Показано, что наибольшие значения тритиевых выбросов характерны для тяжеловодных реакторов и заводов по переработке тритийсодержащих отходов. Рассмотрены способы обращения с тритийсодержащими водными отходами.

Ключевые слова: дейтерий, тритий, протий, детритизация, ядерные энергетические установки

The problem of treatment of tritium-containing water waste

Magomedbekov E.P., Rastunova I.L.

D. Mendeleev University of Chemical Technology of Russia

9 Miusskaya sq., 125047, Moscow, Russia

e-mail: eldar@rctu.ru

The article presents an analysis of the literature data and own research devoted to the problems of the formation of tritium in nuclear power plants of various types, methods for extracting and storing it, as well as a comparative analysis of regulatory documents regulating the tritium supply to the environment. It is shown that the greatest values of tritium emissions are characteristic for heavy water reactors and plants for processing tritium-containing waste. Methods of treatment of tritium-containing water waste are considered.

Keywords: deuterium, tritium, protium, detritiation, nuclear energy installation

Введение

В последние годы в связи с планами ГК «Росатом» по строительству атомных электростанций (АЭС) за рубежом проблема образования трития в реакторных установках различного типа и его возможного поступления в окружающую среду становится все более и более актуальной.

Тритий (^3H , T) – радиоактивный изотоп водорода с периодом полураспада $\tau_{1/2} = 12,35$ года и удельной активностью 356,3 ТБк/г – распадается, испуская мягкие β -частицы ($E = 18,6$ кэВ; $E_{\text{сред}} = 5,71$ кэВ) с коротким пробегом в несколько сантиметров в воздухе, 0,9 мкм в воде и около 0,6 мкм в тканях [1-3]. Таким образом, тритий не представляет опасности, при нахождении во внешней среде, однако при вдыхании, пероральном поступлении с пищей и водой, либо при проникновении через кожу он представляет опасность за счет внутреннего воздействия излучения. Скорость подкожного проникновения тритийсодержащей воды составляет 10 ± 3 кБк/(см²×мин), что значительно выше скорости поглощения газообразного трития, равной $2,7 \pm 0,6$ Бк/(см²×мин) [4]. Наибольшую опасность представляет тритий, находящийся в виде воды, так как он способен обмениваться с водородом воды и других соединений, входящих в состав организма. В частности, он может быть усвоен молекулами ДНК, и за счет испускаемого бета-излучения повредить генетический аппарат клеток и спровоцировать онкологические заболевания [1,2,4]. Вследствие генетической значимости трития проводится мониторинг его содержания в водных ресурсах, атмосфере и биологических объектах, находящихся на территориях стран, эксплуатирующих ядерные установки [2, 5-7]. Тритий относят к основным дозообразующим радионуклидам, вследствие чего вводится контроль его содержания в выбросах 99% АЭС европейских стран, а его вклад в суммарную эффективную дозу облучения населения оценивается на уровне нескольких процентов [7].

Основными источниками поступления трития в окружающую среду являются как естественные, так и техногенные процессы, вклад которых в общее количество трития на Земле существенно различается (см. рис. 1).

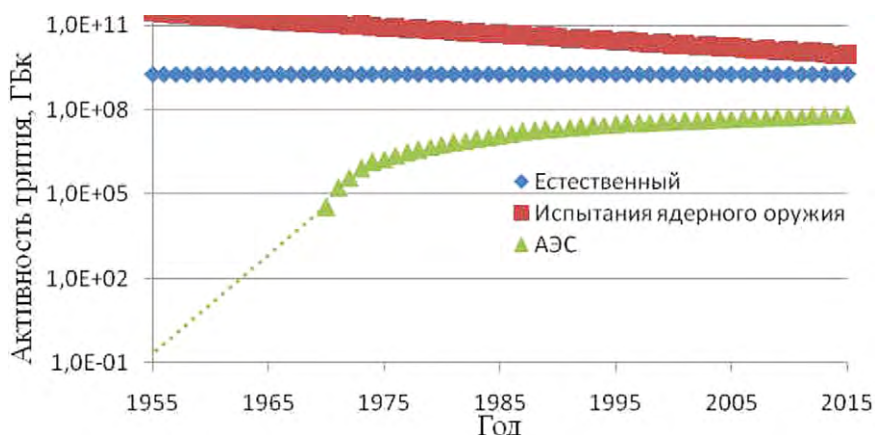


Рис 1. Сравнение активности фонового и техногенного трития [8]

Тритий образуется в природе за счет ядерных реакций, проходящих в верхних слоях атмосферы при взаимодействии космического излучения с молекулами азота и кислорода воздуха в количестве $\sim 7,4 \times 10^4$ ТБк в год [2]. Образующиеся атомы трития за счет реакции радиационного окисления и изотопного обмена образуют молекулы НТ и НТО, которые в виде осадков попадают на поверхность земли, распределяясь между гидро-, страто- и литосферами [9]. С учетом распада, равновесное содержание трития оценивается в пределах $(1,2 - 4,5) \times 10^6$ ТБк [1-2, 8-10]. По данным Агентства по ядерной энергии Организации экономического развития и сотрудничества, в развитых странах в начале 80-х годов XX века ежегодное количество выбросов трития гражданских ядерных энергетических и перерабатывающих установок достигало или несколько превышало данное значение, а основной причиной повышения содержания трития в окружающей среде стала оборонная деятельность. Так, за счет наземных испытаний ядерного оружия в 1954 – 1962 гг. поступление трития в окружающую среду существенно возросло и к началу 1970 г. по различным данным составляло от $1,6 \times 10^8$ до $2,4 \times 10^8$ ТБк, причем практически все это количество приходилось на северное полушарие [1-2, 11-13]. За счет предприятий по производству ядерного оружия, на пике холодной войны в 70-х и 80-х годах XX века ежегодные выбросы трития составляли до $2,8 \times 10^6$ ТБк [2]. После окончания «гонки вооружений» и прекращения наземных ядерных испытаний к 2007 г. содержание трития в окружающей среде сократилось примерно в 16 раз за счет естественного распада радионуклида

[1-2, 6, 9]. Из рисунка 1 видно, что наряду со снижением уровня тритиевого загрязнения за счет испытаний ядерного оружия наблюдается рост его поступления за счет атомных электростанций. При этом следует отметить, что, хотя вклад АЭС в общее содержание радионуклида в атмосфере примерно на 2 порядка меньше, чем за счет остальных источников, проблемы обращения с тритием для ядерных установок являются актуальными.

Образование трития на ядерных энергетических установках

В настоящее время основными источниками поступления техногенного трития в окружающую среду являются ядерные реакторы и заводы по переработке облученного ядерного топлива. Образование трития на АЭС зависит от типа реакторной установки и может происходить за счет тройного деления ядер ^{235}U топлива; нейтронного захвата ядрами бора и лития при борном регулировании водного режима теплоносителя; реакции $\text{D}(n,\gamma)\text{T}$ в теплоносителе и замедлителе тяжеловодных реакторов; реакции $^3\text{He}(n,p)\text{T}$ в газовом контуре реакторов типа РБМК и др. [8].

На рисунке 2 представлены значения уровней концентраций трития на различных объектах ядерной индустрии и в окружающей среде по данным Департамента энергетики США (U.S. Department of Energy) на 2008 г. [11]. Из рисунка видно, что концентрации трития в тяжеловодных реакторах могут достигать порядка 10^2 Ки/л ($1 \text{ Ки} = 3,7 \times 10^{10} \text{ Бк}$), что на несколько порядков выше, чем характерные значения для легководных. При этом следует отметить, что для американских тяжеловодных установок характерный уровень трития в десятки раз ниже, чем для канадских.

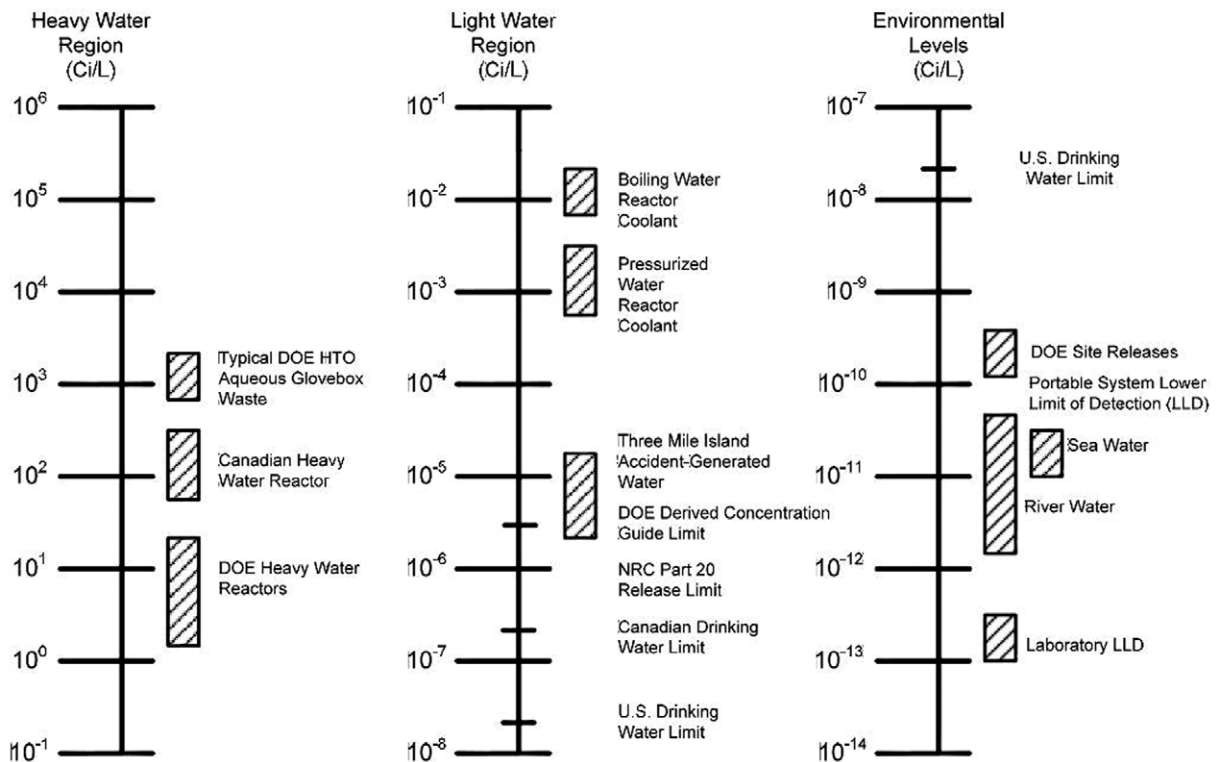


Рис. 2. Сравнение уровней концентрации трития в воде на объектах ядерной индустрии и окружающей среде [11]

Количество выбросов трития зависит от типа реактора, его параметров, мощности и т.п. На рисунке 3 представлены значения поступления трития в атмосферу для 6 типов энергетических ядерных реакторов: PWR (водо-водяной ядерный реактор типа ВВЭР), BWR (корпусной кипящий реактор), PHWR (тяжеловодный реактор), GCR (газоохлаждаемый реактор), LWGR (графито-водный реактор), FBR (реактор-размножитель на быстрых нейтронах). Из представленных данных видно, что основное поступление трития происходит за счет работы тяжеловодных реакторных установок, а вклад всех остальных АЭС, включая и реакторы водо-водяного типа, производящих около 65% электроэнергии, на порядки меньше.

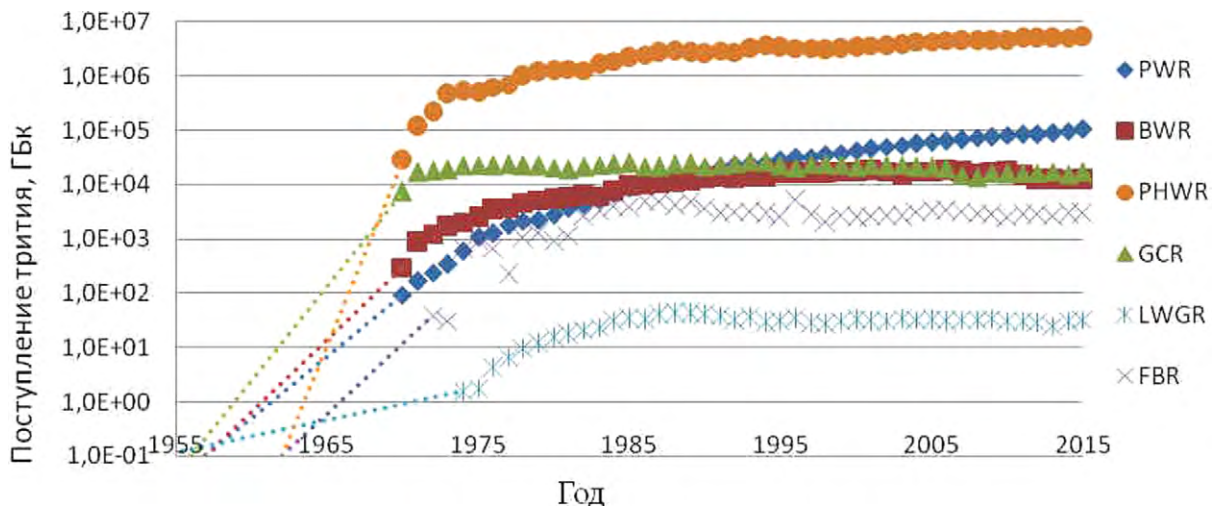


Рис. 3. Ежегодное поступление трития в атмосферу с выбросами АЭС для основных типов энергетических реакторов [8]

Это хорошо согласуется с данными United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), согласно которым в 1997 г. значения суммарных газовых и жидких сбросов трития в виде НТО для тяжеловодного реактора на АЭС Брюс (блоки 1-4) в Канаде составили 600 ТБк/год; для реактора типа PWR на АЭС Дьябло-Каньон (блоки 1 и 2) в США - 55 ТБк/год, а для реактора типа BWR на АЭС Филиппсбург в Германии – всего 1,6 ТБк/год [2]. При этом следует отметить, что установленные нормативные пределы выбросов НТО в Канаде на несколько порядков превышают нормы для стран Европы. Так, например, в Германии установленный предел выбросов трития составляет 70 ТБк/год на каждый ядерный объект, а для реактора Брюс в Канаде – 826000 ТБк/год [2]. Таким образом, установленные предельные значения фактически не ограничивают количество трития, сбрасываемого в окружающую среду при нормальной работе реакторов, т.к. в десятки, а в Канаде и в тысячи раз превышают реальные выбросы.

Значительное превышение количества образующегося трития в тяжеловодных реакторах обусловлено прохождением в замедлителе и теплоносителе реакции радиационного захвата нейтрона дейтроном $D(n, \gamma)T$. Кроме того, если из замедлителя не удаляется радиогенный ${}^3\text{He}$, который в свою очередь является продуктом распада трития, то его реакция ${}^3\text{He}(n, p)T$ с нейтронами любых энергий будет воспроизводить тритий. Другие реакции, характерные для реакторов всех типов (тройное деление, ${}^{14}\text{N}(n, t){}^{12}\text{C}$ и др.), вносят существенно меньший вклад. [1, 9, 12]. В других типах реакторов в качестве охлаждающего агента используются различные материалы, например, в реакторах с водой под давлением и реакторах с кипящей водой используется обычная вода, а в усовершенствованных реакторах с газовым охлаждением используется CO_2 и графит в качестве охладителя и замедлителя соответственно. В данных типах реакторов тритий формируется по большей части как продукт деления третьего порядка, т.е. он отделяется от ${}^{235}\text{U}$ и ${}^{239}\text{Pu}$, когда они подвергаются делению. Этот процесс также происходит и в реакторах CANDU, где скорость активации трития приблизительно в 1000 больше, чем скорость его деления.

За счет постоянного облучения нейтронами в замедлителе и теплоносителе тяжеловодных реакторов происходит увеличения содержания трития в течение работы реактора до достижения равновесных значений. До внедрения систем детритизации сдерживание роста концентрации T в тяжеловодных реакторах происходило двумя путями – за счет естественного распада радионуклида и компенсации потерь теплоносителя и замедлителя тяжелой водой, полученной из природного сырья и практически не содержащей трития. Это приводило к увеличению выбросов трития. В качестве примера на рисунке 4 представлена динамика роста тритиевых выбросов для реакторов CANDU-6 в течение первых 12 лет эксплуатации [2].



Рис. 4. Темпы роста выбросов трития для реакторов CANDU-6 [2]:
1 – Pt Lepreau; 2 – Wolsong-1; 3 – Gentilly-2

За счет большого количества тяжелой воды в реакторе CANDU и выведения трития только за счет его распада и компенсации потерь, время накопления трития до равновесного значения в теплоносителе по расчетам составляло около 30 лет [2]. В ряде работ приводятся расчетные значения равновесного содержания трития в замедлителе и теплоносителе тяжеловодных реакторов без систем детритизации. Так, в работе [13] при начальной скорости роста содержания трития в замедлителе CANDU на уровне 4 – 5 Ки/кг в год его стационарная концентрация оценивается на уровне 95 Ки/кг. В работе [14] также для реактора CANDU приводятся значения стационарных концентраций трития в замедлителе 3100 ГБк/кг и теплоносителе 75 ГБк/кг, что соответствует 84 и 2 Ки/кг соответственно. Румынские специалисты также отмечали, что за 10 лет эксплуатации реактора типа CANDU-6 концентрация трития достигла 36 Ки/кг, а при средней скорости накопления $\sim 3,7$ Ки/кг в год к 15 годам эксплуатации она возрастет до 54 Ки/кг [15]. По данным корейских специалистов, за 20 лет эксплуатации реактора CANDU-6 (Wolsong Unit-1) уровень трития в замедлителе достиг 2,22 ТБк/кг (60 Ки/кг), что согласуется с приведенными выше данными [16].

Постоянный рост объема накопленного трития приводит к увеличению количества выбросов и сбросов трития, что влечет за собой увеличение воздействия ионизирующего излучения на персонал и население посредством перрорального и ингаляционного поступления в организм тритиевой воды. Для снижения техногенного воздействия трития на окружающую среду допустимые нормы его поступления изменялись по мере развития науки и техники с учетом международных рекомендаций.

Нормирование техногенного трития

Для сбросных тритийсодержащих вод установленный в России уровень вмешательства в настоящее время составляет 7600 Бк/л [17]. Следует отметить, что этот показатель различается в странах мира. Так, в Канаде нормативные значения близки к российским – концентрация трития в виде воды в жидких промышленных отходах не должна превышать 7000 Бк/кг; однако в США, согласно рекомендациям Американского агентства по охране окружающей среды (EPA US), установленный предел на порядок ниже – 740 Бк/кг, а нормы Евросоюза предусматривают еще более жесткие требования – не более 100 Бк/кг [2]. При этом для строящегося во Франции Международного экспериментального термоядерного реактора ITER установленные нормы по тритию для сбросных вод составляют 7400 Бк/кг [18]. Таким образом, из вышеизложенного видно, что уровень требований к радиационной безопасности обслуживающего персонала и к сбросам в окружающую среду в последнее время повышается и требует совершенствования методов обращения с тритием.

Для выполнения нормативных требований на ядерных объектах необходимо предусматривать системы очистки газовых и жидких потоков от трития, в результате чего происходит образование жидких (ЖРО) и твердых (ТРО) радиоактивных отходов (РАО). Вопрос обращения с тритийсодержащими отходами заслуживает отдельного внимания. Основными принципами обращения с РАО являются: кондиционирование, т.е. перевод в химически устойчивую форму, которая сохраняет стабильность в течение времени хранения РАО (периода, необходимого для уменьшения активности до уровня вмешательства); минимизация объемов; обеспечение радиационной

безопасности на всех стадиях обращения с РАО, а также максимальная простота, надежность и безопасность технологий транспортировки, хранения, переработки и захоронения [6, 19]. В России классификация по активности радионуклидов предполагает три класса – низкоактивные (НАО), среднеактивные (САО) и высокоактивные (ВАО). В таблице 1 представлены критерии категорирования жидких и твердых РАО в соответствии с ОСПОРБ 99/2010.

Таблица 1

Классификация жидких и твердых радиоактивных отходов [20]

Категория отходов	Удельная активность, кБк/кг			
	Тритий	Бета-излучающие радионуклиды (исключая тритий)	Альфа-излучающие радионуклиды (исключая трансурановые)	Трансурановые радионуклиды
Низкоактивные	от 10^6 до 10^7	менее 10^3	менее 10^2	менее 10^1
Среднеактивные	от 10^7 до 10^{11}	от 10^3 до 10^7	от 10^2 до 10^6	от 10^1 до 10^5
Высокоактивные	более 10^{11}	более 10^7	более 10^6	более 10^5

Из таблицы видно, что тритийсодержащие отходы вынесены в отдельную группу (в отличие от предыдущих редакций ОСПОРБ), причем граничные значения удельной активности для них на 3-4 порядка выше, чем для прочих бета-активных излучателей. Дальнейшее совершенствование подходов к категорированию РАО отражено в Постановлении Правительства Российской Федерации от 19 октября 2012 г. № 1069 [21], где вводится понятие удаляемых радиоактивных отходов и их деление на 6 классов, основанное на технологических особенностях обращения с ними. Первые 4 класса включают в себя твердые и отвержденные жидкие радиоактивные отходы, к пятому относят ЖРО, а к шестому – РАО, образующиеся при добыче и переработке урановых руд, а также при осуществлении не связанных с использованием атомной энергии видов деятельности по добыче и переработке минерального и органического сырья с повышенным содержанием природных радионуклидов. При этом для тритийсодержащих удаляемых ЖРО, отнесенных к 5 классу, устанавливается принадлежность к среднеактивным РАО при активности от 10^4 до 10^8 Бк/г и к низкоактивным – до 10^4 Бк/г. ЖРО с более высокими концентрациями трития рассматриваются только в виде отвержденных РАО и относятся в среднеактивным 2 класса при активности от 10^8 до 10^{11} Бк/г, или к высокоактивным (более 10^{11} Бк/г) 1 или 2 классов [22]. Необходимо учитывать, что тритийсодержащую тяжелую воду нельзя рассматривать как «удаляемые радиоактивные отходы», поскольку она относится к специальным неядерным материалам, подлежащим строгому балансовому учету по дейтерию [17, 22].

В большинстве стран мира концепция снижения воздействия техногенного трития на окружающую среду и обращения с тритийсодержащими водными отходами предполагает минимизацию объемов ЖРО с последующим переводом тритийсодержащих отходов в твердую фазу для захоронения или долговременного хранения. Так, например, в Канаде и США предпочтение отдается первому варианту [2, 11], а во Франции рассматривается вариант промежуточного хранения НТО в течение 50 лет с последующим захоронением отходов [23]. В случае больших технологических потоков тритийсодержащей воды проводится их детритизация для возврата в технологический цикл или сброса в окружающую среду. Образующийся при этом концентрат с повышенным содержанием трития может рассматриваться как ЖРО и передаваться на хранение и захоронение в соответствии с принятой в стране концепцией [1-2, 9]. При этом следует отметить, что применявшийся до недавнего времени способ разбавления очень низкоактивных тритийсодержащих водных отходов и потоков до сбросных норм с последующим сбросом в окружающую среду в настоящее время запрещен в большинстве стран мира, в том числе и в России [20].

Отверждение тритийсодержащих водных ЖРО представляет собой отдельную задачу, решение которой требует специальных подходов. Вследствие того, что тритий находится в материнской матрице ЖРО – воде, возникает необходимость применения особых технологических решений при их иммобилизации. В частности, необходимо, чтобы все технологические процессы проходили при невысокой (комнатной) температуре, чтобы не допустить увеличения дозовой нагрузки на персонал за счет поступления трития в окружающую среду в виде паров воды. Таким образом, для иммобилизации тритированной воды наиболее подходящей является технология цементирования или включения в матрицы на основе фосфатных вяжущих систем [24]. С учетом структуры цементных и керамических матриц, где вода находится как в виде кристаллогидратов, так и в адсорбированном состоянии в порах отвержденного материала, принципиальным является вопрос о надежности иммобилизации трития в цементных матрицах. Для снижения скорости выщелачивания тритийсодержащей воды из отвержденных матриц в цементную композицию предлагается вводить в виде добавок кембрийскую глину, бентонит, вермикулит, сланцы или цеолиты, а также органические полимерные материалы. Работы, направленные на поиск надежных способов иммобилизации тритийсодержащих ЖРО активно проводятся как в России, так и за рубежом. [24-25]

Список литературы

1. Андреев Б.М., Зельвенский Я.Д., Катальников С.Г. Тяжелые изотопы водорода в ядерной технике. М.: Энергоатомиздат, 1987. 456 с.
2. Fairlie I. Tritium Hazard Report: Pollution and Radiation Risk from Canadian Nuclear Facilities. Greenpeace. June 2007. 92 p.
3. Эванс Э. Тритий и его соединения / Пер с англ. И.Б. Бравермана, А.Д. Власова, Э.Б. Шиллер. М.: Атомиздат. 1970. 312 с.
4. Богданов К.М. Биофизические закономерности обмена тритиевой воды в организме. М.: Энергоиздат, 1981. 136 с.
5. Kitabatake S., Kimura H., Kimura Y., Igarashi A., Kudo H., Sasaki K., Takeishi M., Kon Y., Shima S. Tritium Concentration in Environmental Samples Around the Rokkasho Reprocessing Plant // Fusion Science and Technology. 2011. Vol. 60. No. 4. P. 1280-12783.
6. Investigation of the Environmental Fate of Tritium in the Atmosphere. Published by the Canadian Nuclear Safety Commission. 2009. INFO-0792. 110 p.
7. Ливанцова С.Ю., Снакин В.В. Техногенный тритий в окружающей среде // Жизнь Земли. 2014. Т. 35-36. С. 261-269.
8. Десятков Д.Д., Екидин А.А. Оценка поступления трития в окружающую среду от выбросов АЭС. // Биосферная совместимость: человек, регион, технологии. 2018. № 1(21). С. 88 – 96.
9. Андреев Б.М., Магомедбеков Э.П., Розенкевич М.Б., Сахаровский Ю.А. Гетерогенные реакции изотопного обмена трития. М.: Эдиториал УРСС. 1999. 208 с.
10. Investigation of the Environmental Fate of Tritium in the Atmosphere. Part of the Tritium. Studies Project: CNSC, 2009. 103 с.
11. DOE Handbook: Tritium Handling and Safe Storage. DOE-HDBK-1129-YR. U.S. Department of Energy. Washington. D.C.20585. 2008. p. 149.
12. Андреев Б.М., Магомедбеков Э.П., Розенкевич М.Б., Райтман А.А., Сахаровский Ю.А., Хорошилов А.В. Разделение изотопов биогенных элементов в двухфазных системах. М.: ИздАТ, 2003. 376 с.
13. Bonnett I., Busigin A., Shapiro A. Tritium Removal and Separation Technology Developments. // Fusion Science and Technology. 2008. No. 1. Vol. 54. P. 209-214.
14. Suppiah S., Philippi N., Senohrabek J., Boniface H., Rodrigo L. Tritium and Technology Developments for its Management a Canadian Perspective // Fusion Science and Technology. 2011. Vol. 60. No.4. P.1311-1315.
15. Bornea A., Zamfirache M., Stefan L., Stefanescu I. The Prediction of Tritium Level Reduction of NPP Cernavoda Using CTRF // Fusion Science and Technology. 2011. Vol. 60. No.4. P. 1411-1413.
16. Yook D., Lee K., Chung H. Assessment of the Environmental Impact of Tritium Release from Wolsong Tritium Removal Facility at the Postulated Accident // Fusion Science and Technology. 2005. Vol. 48. No.1. P.472-475.
17. СанПиН 2.6.1.2523–09. Нормы радиационной безопасности (НРБ–99/2009). М.: Федеральный центр гигиены и эпидемиологии Роспотребнадзора, 2009. 100 с.
18. Rosanvallon S., Benchikhoun M., Giattaglia S., Uzan J. Elbez, Gastaldi O., Na B.S., Taylor N. Management of Tritium in ITER Waste // Fusion Science and Technology. 2011. Vol. 60. No. 3. P. 855-860.
19. Технологические и организационные аспекты обращения с радиоактивными отходами. МАГАТЭ. ВЕНА. 2005. АЕА-TCS-27. 221 с.
20. СП 2.6.1.2612–10. Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности (ОСПОРБ 99/2010): Санитарные правила и нормативы. М.: Федеральный центр гигиены и эпидемиологии Роспотребнадзора. 2010. 83 с.
21. О критериях отнесения твердых, жидких и газообразных отходов к радиоактивным отходам, критериях отнесения радиоактивных отходов к особым радиоактивным отходам и к удаляемым радиоактивным отходам и критериях классификации удаляемых радиоактивных отходов. Постановление Правительства Российской Федерации от 19.10.2012 г. № 1069.
22. Основные правила учета и контроля ядерных материалов (НП-030-12). М.: ФБУ «НТЦ ЯРБ». 2012. 48 с.
23. D. Canas, C. Decanis, K. Liger, D. Dall'ava, J. Pamela Classification Methodology for Tritiated Waste Requiring Interim Storage // Fusion Science and Technology. 2015. Vol. 67. P. 328-331.
24. Растунова И.Л., Защелкина Л.И. Оценка возможности использования матриц портландцемента для отверждения низкоактивных тритийсодержащих водных отходов // Огнеупоры и техническая керамика. 2013. № 1–2. С. 3-7.
25. Wattez T., Duhart-Barone A., Lorente S. Tritium through-diffusion test in non steady state: Can the effective diffusion coefficient be determined? // Construction and Building Materials. 2015. Vol. 93. P. 121–129.

УДК 621.039.733

Оптимизация технологического процесса концентрирования ЖРО на вакуумной выпарной установке «Экоприма 4000-К»

Павлова Г.Ю., Сластенников Ю.Т., Волков Е.С.

ФГУП «РАДОН»

e-mail: YTSlastennikov@radon.ru

В ходе опытной эксплуатации вакуумной выпарной установки «Экоприма 4000-К», проведены доводочные работы, повысившие надежность работы и время полезного использования установки. Все образовавшиеся концентраты и регенераты были упарены на этой выпарной установке. Выпарная установка доукомплектована модулями обратного осмоса, что повысило общую производительность по накопленным ЖРО в 4 – 7 раз.

Ключевые слова: выпарная установка, жидкие радиоактивные отходы, пермеат

Optimization of the technological process of concentrating LRW on a vacuum retailed installation «Ecoprim 4000-K»

Pavlova G.Y, Slastennikov Yu.T., Volkov E.C.

RADON FSUE

e-mail: YTSlastennikov@radon.ru

During the trial operation of the vacuum evaporator «Ekoprime 4000-K», the finishing work was carried out, which increased the reliability of operation and the useful life of the installation. All the resulting concentrates and regenerates were evaporated at this evaporator. The evaporator unit was equipped with reverse osmosis modules, which increased the overall performance of the accumulated LRW by 4 - 7 times.

Keywords: evaporation plant, liquid radioactive waste, permeate

Целью концентрирования жидких радиоактивных отходов (ЖРО) является сокращение объема радиоактивных отходов и снижение затрат на их переработку и передачу национальному оператору.

До 2018 года для концентрирования ЖРО в ФГУП «РАДОН» использовались роторно-пленочные выпарные аппараты на установке остекловывания и УРБ-8. Достоинствами этих аппаратов является пониженное «обрастание» осадками греющих поверхностей, низкое солесодержание дистиллята и относительно высокая производительность, позволяющая перерабатывать не только образующиеся, но и накопленные отходы. Недостатками являлись сезонность работы – только в отопительный сезон, необходимость организовывать круглосуточную работу, высокая себестоимость переработки. В 2017 году приобретена и введена в опытную эксплуатацию вакуумная выпарная установка «Экоприма 4000-К», способная работать круглогодично и расходовать в 5 – 10 раз меньше энергии на переработку единицы отходов за счет рекуперации энергии.

Целями приобретения и внедрения вакуумной выпарной установки было снижение затрат на концентрирование ЖРО, возможность круглогодичного использования выпарки, снижение энергозатрат и трудозатрат.

Вакуумная выпарная установка «Экоприма 4000-К» смонтирована на единой раме (рисунок 1). Принцип работы показан на рисунке 2. Нагревание ЖРО и конденсация пара производится тепловым насосом, работающем на фреоне R407C. ЖРО под действием вакуума, поступают в нижнюю часть выпарного аппарата, где нагреваются греющим змеевиком. В греющем змеевике конденсируется фреон под давлением 18 – 22 бар. Образующийся при кипении ЖРО пар проходит через сепаратор, отделяется от капель жидкости и попадает в верхнюю часть выпарного аппарата, где конденсируется на охлаждающем змеевике. Внутри охлаждающего змеевика испаряется жидкий фреон под давлением 4 – 7 бар [1]. Дистиллят выводится из выпарной установки на станцию очистки спецстоков на доочистку. Вакуум в выпарной установке создается водокольцевым насосом. Паспортная производительность установки 150 кг дистиллята в час.



Рис 1 Общий вид установки «Экоприма 4000-К» без дополнительных модулей

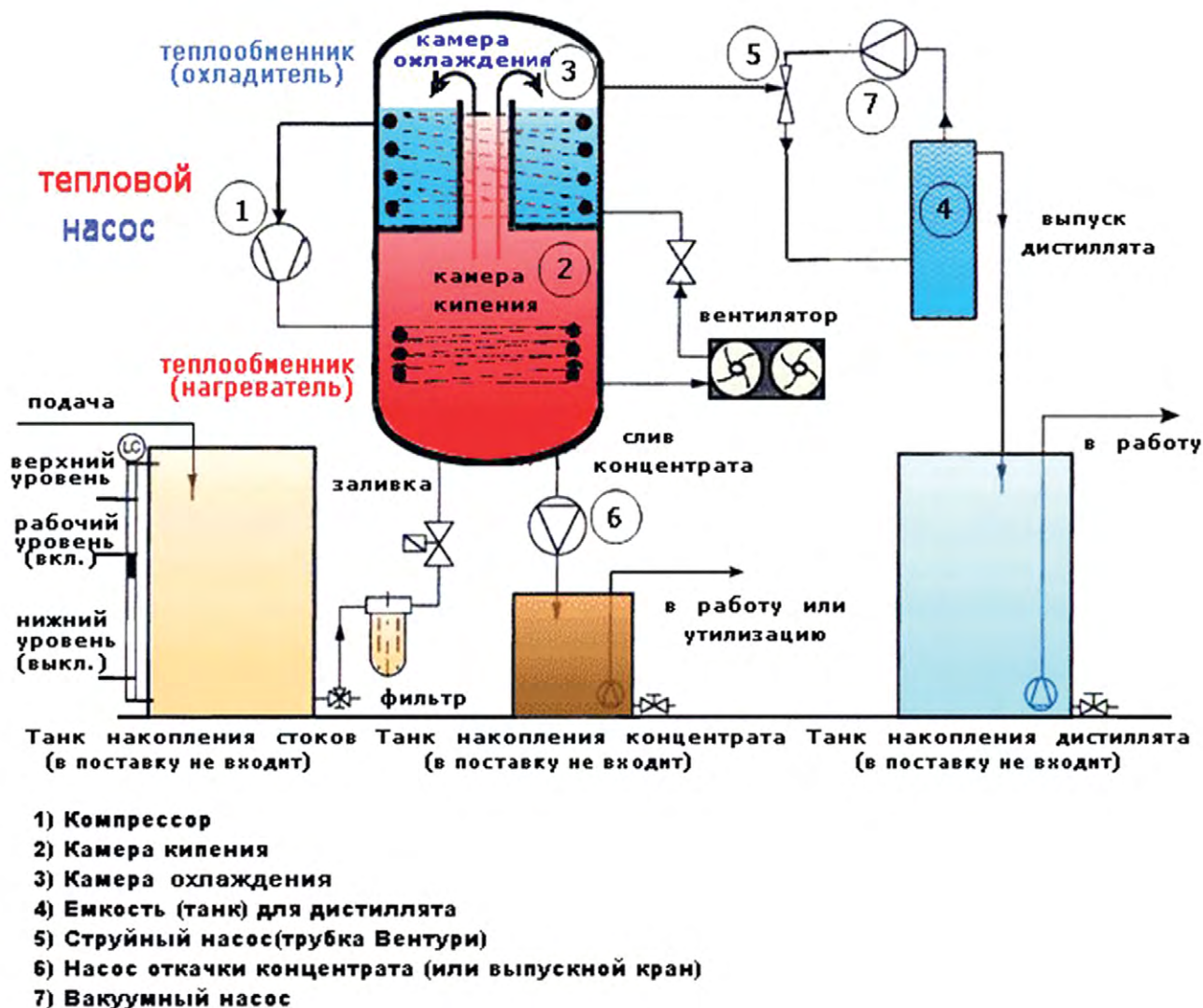


Рис 2 Принципиальная схема работы выпарной установки «Экоприма 4000К»

В 2018 году в рамках научно-исследовательской работы проведена опытная эксплуатация установки, в ходе которой выявлены проблемы, которые могут появиться при переработке ЖРО, отработаны режимы концентрирования. Проведена доработка выпарной установки путем монтажа системы предварительного концентрирования. Предварительное концентрирование выполняет двухступенчатый высоконапорный обратный осмос [2].

Общая гидравлическая схема выпарной установки с модулями обратного осмоса показана на рисунке 3. Два модуля обратного осмоса «Стерипор 1» и «Стерипор 0,5» показаны на рисунке 4. Принципиальная работа обратноосмотического концентрирования заключается в следующем: ЖРО проходят фильтрацию на песчаном фильтре и поступают на первую ступень обратного осмоса – модуль «Стерипор 1», где получают большую часть обессоленной воды. Концентрат с первой ступени обратного осмоса поступает на вторую ступень – модуль «Стерипор 0,5», где происходит основная фаза концентрирования при давлении 5 МПа. После второй ступени, концентрат, с содержанием 30 – 50 г/л доконцентрируется на выпарной установке.

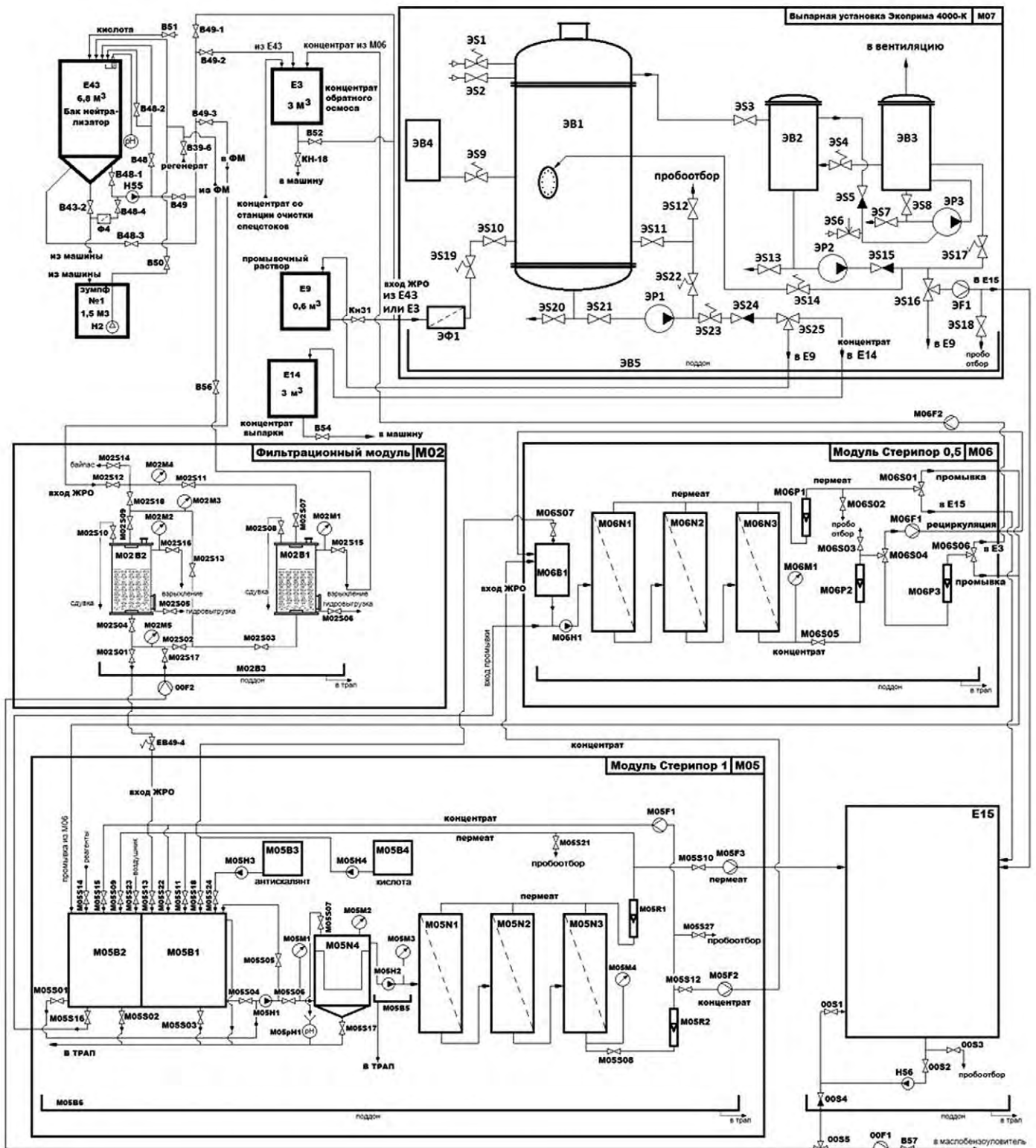


Рис 3 Гидравлическая схема концентрирования ЖРО на выпарной установке «Экоприма 4000-К» с дополнительными модулями



Рис 4 Общий вид системы двухступенчатого обратноосмотического концентрирования ЖРО

В ходе опытной эксплуатации в 2018 году переработано более 150 м³ концентратов ЖРО, образованных на станции очистки спецстоков и привезенных из хранилища жидких отходов ХЖО-1. В результате концентрирования получено 23 м³ кубового остатка с содержанием от 150 до 330 г/л.

Основными проблемами при работе установки были пенообразование в выпарном аппарате, отложение осадков на греющем змеевике и нарушение герметичности в вакуумируемом оборудовании.

Для борьбы с пенообразованием выбран пеногаситель «Пента 465», отработан режим и дозировка его внесения. Проблема решена полностью.

Нарушение герметичности устранено заменой уплотнений и монтажом дополнительных обратных клапанов.

Отложение осадков на греющем змеевике и внутренних поверхностях выпарного аппарата неизбежный процесс, так как в состав ЖРО входят ионы, образующие при концентрировании гипс, фосфаты кальция и железа и другие нерастворимые соединения. Для борьбы с этой проблемой использовали режима выпарки при pH 4 – 5, для предотвращения карбонатных отложений. Для растворения отложений гипса проводили периодическую промывку выпарного аппарата комплексом. Проблема решена не полностью и производительность выпарного аппарата составляет 80% от номинальной.

Смонтированная система обратноосмотического концентрирования позволила увеличить производительность концентрирования по накопленным ЖРО. Большая часть накопленных ЖРО имеют содержание от 3 до 8 г/л и могут быть сконцентрированы на обратноосмотических установках с меньшими затратами и большей производительностью, чем на выпарке. При этом, объем отходов, поступающих на выпарку, сокращается от 3 до 7 раз.

В ходе испытаний переработано 22 м³ ЖРО из ХЖО-1 с содержанием от 3 до 9 г/л. В результате получено 3,1 м³ концентрата и 18,9 м³ пермеата. Таким образом, сокращение объема составило 7,1 раза.

Производительность по пермеату была от 0,9 до 1,1 м³/ч, а по ЖРО порядка 1,25 м³/ч.

Содержание концентрата составило от 29 до 52 г/л [3].

Система обратноосмотического концентрирования и выпарка работали одновременно.

Таким образом, в ходе испытаний, общая производительность выпарной установки с дополнительными модулями увеличилась примерно в 7 раз. Технические характеристики установки «Экоприма 4000К» с дополнительными модулями приведены в таблице.

Технические характеристики установки «Экоприма 4000-К» с дополнительными модулями

Наименование параметра	Значение параметра
Производительность выпарного аппарата по дистилляту, кг/час	100 - 150
Электрическая мощность выпарного аппарата, кВт	27
Содержание кубового остатка, г/л	До 300
Содержание дистиллята, г/л	Менее 1
Производительность по пермеату модулей обратного осмоса, л/ч	500 - 1100
Электрическая мощность системы обратноосмотического концентрирования, кВт	8
Содержание концентрата обратного осмоса, г/л	До 50
Содержание входящих ЖРО, г/л	До 25
Содержание пермеатов, г/л	Менее 1

Заключение

В 2018 году проведена опытная эксплуатация вакуумной выпарной установки «Экоприма 4000-К», в ходе которой проведены доводочные работы, повысившие надежность работы и время полезного использования установки. Все концентраты и регенераты, образовавшиеся в 2018 году на станции очистки спецстоков, были упарены на этой выпарной установке. Выпарная установка доукомплектована модулями обратного осмоса, что повысило общую производительность по накопленным ЖРО в 4 – 7 раз. Основной проблемой в работе выпарной установки «Экоприма 4000К» является выпадение труднорастворимых отложений на греющем змеевике.

Список литературы

1. Вакуумный выпариватель модель ECOPRIMA® 4000-К. Руководство по применению и обслуживанию. Шелл Евразия. – М, 2017 – 47 с.
2. Питерцев М.Ю., Белый М.Д., Сластенников Ю.Т., Закатилова Е.И., Волков Е.С. Оптимизация технологического процесса концентрирования ЖРО на вакуумной выпарной установке «Экоприма 4000-К». Отчет НИР, ФГУП «РАДОН» - 2018
3. Протокол испытаний выпарной установки Экоприма 4000-К 4000.00.00 с дополнительными модулями. ФГУП «РАДОН» - 2018. – 3 с.

УДК 621.039.735

Оптимальные составы полимерных компаундов для включения отработавших ионообменных смол

Осташкина Е.Е., Павлова Г.Ю., Савкин А.Е.

ФГУП «РАДОН»

e-mail: EOstashkina@radon.ru

Целью данной работы являлся поиск оптимальной полимерной композиции для включения отработавших радиоактивных ионообменных смол. Необходимыми характеристиками получаемой полимерной матрицы являлись низкая температура отверждения, максимальное наполнение ионообменными смолами и отсутствие необходимости ее предварительной термообработки. Для лабораторных экспериментов, проведенных в ходе выполнения данной работы, основными критериями отбора полимерной композиции были длительные жизнестойкость и время отверждения, низкая относительная вязкость, незначительный разогрев при отверждении, невысокая относительная цена и доступность приобретения компонентов. По результатам проведения работы в качестве оптимальных полимерных композиций были выбраны модифицированные эпоксидные смолы марок К-153, КДА и ЭТАЛ-247 с отвердителем ЭТАЛ-45 М. Данные полимерные композиции позволяют включать до 60% масс. отработавших радиоактивных ионообменных смол с влажностью до 53% масс. и соответствуют требованиям нормативных документов.

Ключевые слова: отработавшие радиоактивные ионообменные смолы, полимерный компаунд, механическая прочность, водостойчивость

Optimal compositions of polymeric compounds to include spent ion-exchange resins

Ostashkina E.E., Pavlova G.Y. Savkin A.E.

RADON FSUE

e-mail: EOstashkina@radon.ru

The aim of this work was to find the optimal polymer composition for the inclusion of spent radioactive ion exchange resins. The necessary characteristics of the obtained polymer matrix were low curing temperature, maximum filling with ion exchange resins and the absence of the need for its preliminary heat treatment. For laboratory experiments carried out in the course of this work, the main criteria for the selection of the polymer composition were long life and curing time, low relative viscosity, low heating during curing, low relative price and availability of the purchase of components. According to the results of the work as the optimal polymer compositions were selected modified epoxy resin grades K-153, KDA and ETAL-247 with a hardener ETAL-45 M. These polymer compositions allow to include up to 60 % of the mass. spent radioactive ion exchange resins with moisture content up to 53% by weight. and meet the requirements of regulatory documents.

Keywords: spent radioactive ion exchange resins, polymer compound, mechanical strength, water resistance

Введение

Значительное количество отработавших ионообменных смол (далее ОИОС), накопленных на объектах атомной энергетики, требует разработки особых технологий для обращения с ними и создания специализированных установок для реализации этих технологий. Одним из перспективных способов обращения с ОИОС является технология их включения в полимерную матрицу. Применимость технологии обусловлена соответствием конечного продукта требованиям нормативных документов, наличием сертифицированной упаковки для захоронения, возможностью создания установок с высокой производительностью, референтностью и минимальной стоимостью обращения [1].

В рамках развития указанной технологии специалистами ФГУП «РАДОН» разработано и запатентовано устройство для кондиционирования радиоактивных ионообменных смол методом включения в полимерное связующее [2].

Для применения эпоксидных смол в промышленном масштабе в качестве матриц для включения ОИОС полимерный компаунд должен отвечать следующим требованиям:

- **длительные жизнестойкость и время отверждения.** Соответствие полимерного компаунда данному требованию обеспечивает сохранение текучести компонентов полимерного компаунда в течение определенного промежутка времени, позволяющего осуществить получение матрицы с включенными ОИОС. Благодаря текучести полимерного компаунда обеспечивается равномерное смешение или пропитка компонентов матрицы, а также исключается образование пробок в трубопроводах и других узлах установок.

- **низкая относительная вязкость.** Позволяет эффективно осуществлять подачу компонентов полимерного компаунда по трубопроводам, входящим в состав промышленных установок, обеспечивает равномерность пропитки или смешения.

- **незначительный разогрев при отверждении.** Исключает вероятность преждевременного отверждения полимера, которое может произойти в условиях сильного разогрева.

- **относительно невысокая стоимость и доступность для приобретения.**

Данная работа посвящена поиску оптимальных составов полимерных матриц для включения ОИОС и подтверждению их соответствия нормативным требованиям с перспективой дальнейшего применения для кондиционирования ОИОС, накопленных на объектах атомной энергетики.

Получение и отбор опытных образцов полимерных матриц с включенными ОИОС

В качестве основных составляющих полимерных компаундов, соответствующих указанным выше требованиям, были предложены модифицированные эпоксидные смолы и отвердители, перечисленные в таблице 1.

Таблица 1

Сравнительные характеристики эпоксидных компаундов, выбранных в качестве матриц для ОИОС

Показатель	Марка эпоксидного компаунда		
	КДА	К-153	ЭТАЛ-247
Массовая доля эпоксидных групп, %, не менее	21,5	15-17,5	21,4-22,8
Вязкость при 25 °С, Па·с, не более	4,5	6-12	0,7
Время желатинизации при 25 °С, мин, не более	70	160-230	30

Для лабораторных экспериментов использовали следующие ионообменные смолы:

- катионообменная смола марки DOWEX HCR-S(H) без радионуклидного загрязнения;
- анионообменная смола марки DOWEX MARATHON без радионуклидного загрязнения;
- радиоактивная отработавшая ионообменная смола с Курской АЭС;
- радиоактивная отработавшая ионообменная смола со Смоленской АЭС.

• ОИОС с Курской АЭС и со Смоленской АЭС представляли собой смесь различных сорбентов, основную часть которой составляли гранулы ионообменных смол. По визуальной оценке, в составе смеси также присутствовал клиноптилолит и другие примеси. Влажность ОИОС составляла около 29 % масс.

Загрязненные радионуклидами отработавшие ионообменные смолы с Курской АЭС и Смоленской АЭС предварительно исследовали с помощью радиометрического и гамма-спектрометрического анализа. Результаты анализов проб отработавшей ионообменной смолы Курской АЭС и Смоленской АЭС представлены в Таблице 2.

Таблица 2

Результаты радиометрического анализа, Бк/кг

Происхождение ИОС	$\Sigma\beta$ по Cs^{137}	$\Sigma\beta$ по $St^{90} + Y^{90}$	$\Sigma\beta$ по Y^{90}	$\Sigma\alpha$ по Pu	γ -спектрометрия			
					Cs^{137}	Co^{60}	Nb^{94}	Cs^{134}
Курская АЭС	$5,2 \times 10^7$	$2,85 \times 10^7$	$3,5 \times 10^5$	$4,9 \times 10^4$	$4,3 \times 10^7$	$2,8 \times 10^6$	$6,6 \times 10^5$	$1,5 \times 10^4$
Смоленская АЭС	$2,2 \times 10^5$				$3,6 \times 10^4$	$4,6 \times 10^5$	$3,4 \times 10^3$	—

При получении опытных образцов полимерных компаундов состав эпоксидных композиций варьировали по следующим параметрам:

- вид компаунда (модифицированная смола);
- вид отвердителя;
- массовое соотношение компаунда и отвердителя (от 2:1 до 8:1);
- марка ионообменной смолы;
- влажность ионообменной смолы;
- количество ОИОС в полимерной композиции (от 30 до 60 % масс.);
- способ получения полимерной матрицы (смешение, пропитка).

В реальных условиях отработавшая радиоактивно загрязненная ионообменная смола насыщена влагой.

После использования для очистки различных технологических жидкостей отработавшую смолу обычно направляют на хранение без обезвоживания. С целью моделирования реальных условий для экспериментов использовали влажную ионообменную смолу.

Для насыщения влагой ионообменную смолу помещали в лабораторный стакан с дистиллированной водой и выдерживали в течение суток. Далее готовили пробы ионообменной смолы с различной влажностью.

Для получения максимально влажной пробы смолу отбирали из стакана с водой с помощью мерной ложки. Далее ионообменную смолу помещали на сито и выдерживали в течение нескольких минут для удаления свободной влаги, которая стекала под действием силы тяжести.

Для получения смолы естественной влажности пробу смолы также отбирали из сосуда с водой с помощью мерной ложки. Далее ионообменную смолу выдерживали на воздухе до постоянной массы.

Были также подготовлены пробы ионообменной смолы различной влажности с использованием вакуумной сушки. Навески смолы также отбирали из сосуда с водой с помощью мерной ложки. Далее пробы помещали на фильтр «белая лента» в воронке Бюхнера, соединенной с колбой Бунзена. Колбу Бунзена подключали к вакуумному насосу. Сушку ионообменной смолы максимальной влажности производили с помощью вакуумного насоса в течение 5 минут, 30 минут и 1 часа. После сушки пробы хранили в бюксах с притертой крышкой.

Влажность подготовленных проб ионообменной смолы определяли весовым методом [3]. Для этого среднюю пробу смолы высушивали в сушильном шкафу при температуре 80 °С до постоянной массы. Температуру обработки выбрали в соответствии с техническими характеристиками ионообменных смол, т.е. со значениями их рабочей температуры.

Процентное содержание влаги в ионообменной смоле (% масс) определяли по формуле:

$$W = \frac{(m - m_1)}{m} \times 100$$

где m – масса исходной пробы смолы, г;
 m_1 – масса пробы смолы после сушки, г.

Значения влажности подготовленных для включения в полимерный компаунд образцов ионообменной смолы представлены в таблице 3.

Таблица 3

Влажность ионообменных смол для включения в полимерный компаунд, % масс.

Вид ИОС	Способ подготовки ИОС				
	Удаление свободной влаги	Вакуумная сушка (5 мин)	Вакуумная сушка (30 мин)	Вакуумная сушка (60 мин)	Сушка на воздухе
DOWEX HCR-S(H)	62-64	50-51	51	49	16
DOWEX MARATHON WBA	64-70	52-53	53	51	38
ИОС Курской АЭС и Смоленской АЭС	49,8	—	44,3	—	29,5

Для получения эпоксидных композиций навески компонентов отмеряли с помощью лабораторных электронных весов специального (I) класса точности. Полимерную композицию готовили непосредственно перед употреблением путем механического перемешивания компаунда и отвердителя. Для получения опытных образцов эпоксидных матриц использовали пластиковые стаканчики объемом 50 мл, а также специальные разборные формы (рисунок 1, рисунок 2).

ц

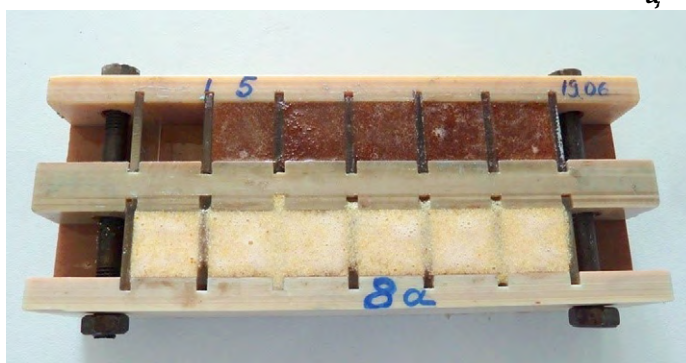


Рис. 1 Разборная форма для получения образцов матриц

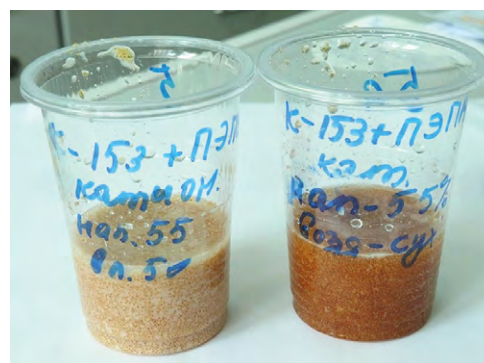


Рис. 2 Пластиковые стаканчики для получения образцов

Введение ОИОС осуществляли несколькими способами:

- перемешиванием ОИОС и эпоксидной композиции;
- засыпкой ОИОС в эпоксидную композицию;
- пропиткой ОИОС путем заливки эпоксидной композиции сверху;
- пропиткой ОИОС подачей эпоксидной композиции на дно емкости с ОИОС.

Полимерная композиция с введенной ОИОС твердела на воздухе при комнатной температуре в вытяжном шкафу. Качество конечного продукта оценивали по следующим показателям:

- длительность отверждения полимерной композиции;
- твердость застывшей матрицы;
- стойкость при длительной выдержке в воде.

Затвердевшие матрицы не должны были липнуть и деформироваться при нажатии. Композиции, не набравшие прочность в течение двух недель, отбраковывали. Матрицы, имеющие существенные дефекты и признаки неполного включения наполнителя, также отбраковывали.

Для тестирования на водостойкость образцы помещали в стеклянные лабораторные стаканы и заливали дистиллированной водой так, чтобы образец был полностью покрыт жидкостью. Тестирование проводили при комнатной температуре при постоянном наблюдении. Матрицы, терявшие форму и целостность в процессе выдержки в воде, отбраковывали. Вид разрушений матриц в воде показан на рисунке 3.

По результатам проведенного предварительного тестирования опытных полимерных матриц, для дальнейших испытаний были отобраны следующие варианты составов компаунд - отвердитель:

КДА+ЭТАЛ 45М

в массовом соотношении 2:1;

К-153+ЭТАЛ 45М

в массовом соотношении 2:1;

ЭТАЛ-247+ЭТАЛ 45М

в массовом соотношении 2:1.

Лабораторные эксперименты показали, что данные эпоксидные композиции могут быть использованы для кондиционирования ионообменных смол влажностью до 53% масс. с наполнением матрицы от 55% до 60% масс. Оптимальный способ получения полимерных композиций – либо перемешивание компонентов, либо пропитка наполнителя эпоксидной составляющей. При изготовлении матриц использовался метод пропитки. Внешний вид полученных эпоксидных матриц показан на рисунке 4.

Тестирование отобранных образцов полимерных матриц с включенными ОИОС на соответствие требованиям нормативной документации

К нормативным документам, определяющим требования по обращению с ИОС, кроме НРБ-99/2009 [4] и ОСПОРБ-99/2010 [5], следует отнести НП-019 [6] и НП – 093 [7].

В таблице 4 перечислены показатели качества полимерного компаунда в соответствии с требованиями НП-019 [6].

Таблица 4

Основные показатели качества полимерного компаунда

Показатель качества	Допустимые значения
Водоустойчивость (скорость выщелачиваемости радионуклидов по ¹³⁷ Cs)	$1 \times 10^{-2} - 1 \times 10^{-3} \text{ г/см}^2 \times \text{сут};$
Термическая стойкость	Отсутствие изменений структуры и водостойкости в результате хранения при температуре от 0°C до +100°C
Радиационная стойкость	Неизменность структуры и водостойкости при значениях дозы 10^4 Гр (по бета-излучению)
Газовыделение	Отсутствует
Объем не вошедших в состав полимерного компаунда ЖРО	Не более 1% объема

Тестировали также такие показатели образцов полимерного компаунда с включенными ОИОС, как механическая прочность, морозостойкость и водостойкость. В процессе твердения образцов полимерного компаунда наблюдался незначительный разогрев. Температура поверхности образцов при этом не превышала 40°C.



Рис. 3 Вид разрушений полимерных матриц

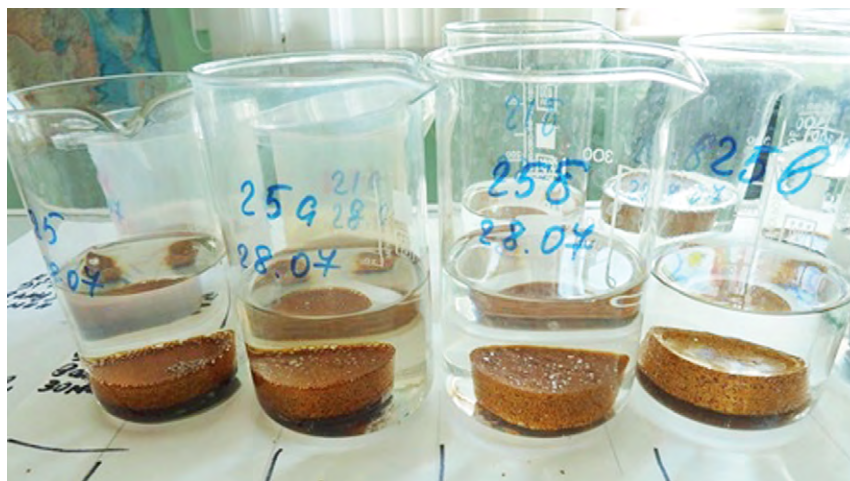


Рис. 4 Внешний вид полимерных матриц оптимального состава

По нормативным требованиям к цементированным радиоактивным отходам, допустимый предел механической прочности компаунда должен быть не менее 4,9 МПа [8]. Механическую прочность образцов полимерного компаунда определяли в соответствии с методикой [9].

Механическая прочность образцов полимерного компаунда с включенными ОИОС различной влажности значительно превышала нормативные требования и находилась в пределах от 49,4 до 74,5 МПа. Морозостойкость опытных образцов эпоксидных композиций определяли в соответствии с методикой [10]. Испытание заключалось в проведении 30 циклов замораживания до минус 18°C и оттаивания при плюс 18°C и последующем измерении механической прочности образцов.

По нормативным требованиям к цементированным радиоактивным отходам [8], морозостойкость цементных матриц соответствует нормам, если среднее значение прочности на сжатие компаунда после проведения испытаний уменьшилось не более чем на 5% по сравнению с контрольными образцами. По экспериментальным данным, прочность образцов эпоксидных композиций либо увеличивалась, либо уменьшилась менее чем на 5% (от 74,5 до 74,1 МПа).

Устойчивость опытных образцов эпоксидных композиций к длительному пребыванию в воде определяли по изменению механической прочности образца после 90-дневной выдержки в воде [8]. Для этого образцы эпоксидных композиций погружали в дистиллированную воду и выдерживали в ней при комнатной температуре в течение 90 суток. Механическую прочность образцов измеряли по методике [9].

По нормативным требованиям к радиоактивным цементированным отходам, величина механической прочности после 90 суток пребывания в воде должна быть не менее 4,9 МПа и не ниже 75% от первоначального значения [8]. Значения механической прочности на сжатие после 90 суток пребывания в воде для образцов полимерного компаунда с включенными ОИОС превышали 50 МПа.

Химическую устойчивость образцов эпоксидных композиций определяли методом длительного выщелачивания [11]. Качество полимерных матриц определяли по скорости выщелачивания ¹³⁷Cs. Тестированию подвергли образцы эпоксидных матриц с включенной радиоактивной отработавшей ионообменной смолой Курской АЭС. Для тестирования образцы помещали в стаканы с дистиллированной водой. Отбор вод выщелачивания производили через 1, 3, 7, 14, 28 и 90 дней.

По нормативным требованиям к радиоактивным цементированным отходам [8], скорость выщелачивания радионуклидов (¹³⁷Cs) не должна превышать величину $1 \cdot 10^{-3}$ г/см² × сут.

Скорость выщелачивания ¹³⁷Cs из образцов эпоксидных композиций с включенной ионообменной смолой Курской и Смоленской АЭС уже после 7 суток испытания не превышала указанного значения и находилась в пределах от $6,45 \times 10^{-4}$ до $5,2 \times 10^{-6}$ г/см² × сут. Обобщенные результаты тестирования образцов полимерных матриц с включенными ОИОС приведены в таблице 5.

Таблица 5

Результаты тестирования образцов полимерных матриц

Наименование показателя	Нормативные требования	Измеренные значения
Прочность, МПа	4,9	> 50
Морозостойкость, МПа	4,9	> 50
Снижение прочности после испытания на морозостойкость, %	Не более 25	0
Водостойкость, МПа	4,9	> 50
Снижение прочности после испытания на водостойкость, %	Не более 25	0
Увеличение объема после испытания на водостойкость, %	Не более 3	1,38 – 3,00
Скорость выщелачивания ¹³⁷ Cs, г/см ² × сут:		
– 1 сутки	1,0 × 10 ⁻² - 1,0 × 10 ⁻³	6,96 × 10 ⁻² – 1,87 × 10 ⁻⁵
– 7 суток		6,45 × 10 ⁻⁴ – 5,2 × 10 ⁻⁶
– 28 суток		3,82 × 10 ⁻⁴ – 7,3 × 10 ⁻⁵
– 90 суток		1,58 × 10 ⁻⁴ – 7,96 × 10 ⁻⁵

Заключение

В ходе выполнения работы провели поиск оптимальных составов полимерной композиции для включения ОИОС. В качестве основы для полимерных композиций выбрали модифицированные эпоксидные смолы марок К-153, КДА и ЭТАЛ-247 с отвердителем ЭТАЛ-45 М в соотношении 2:1 по массе. Данные полимерные композиции имеют низкий экзотермический эффект при смешивании компонентов, длительные жизнестойкость и время отверждения и низкую относительную вязкость.

На основе оптимальных композиций изготовили образцы эпоксидных компаундов с включенными ОИОС с влажностью до 53% масс. Степень наполнения образцов отработанными ОИОС составляла от 55 до 60% масс. Тестирование опытных образцов показало их соответствие требованиям нормативных документов.

Рекомендуемые составы полимерных композиций для включения отработанных ОИОС имеют перспективу применения для целей обращения с накопленными ОИОС с использованием промышленных установок.

Список литературы

1. Опытная переработка отработавших ионообменных смол. Савкин А.Е., Осташкина Е.Е., Павлова Г.Ю., Карлина О.К. Вопросы атомной науки и техники. Сер. «Материаловедение и новые материалы» 2016. Вып. 3(86)
2. Карлина О.К., Осташкина Е.Е., Павлова Г.Ю., Савкин А.Е., Суменко А.В. Патент на изобретение RU 2 637 380 C1 от 06.10.2016
3. Клюковский Г.И., Мануйлов Л.А. Лабораторный практикум по общей технологии силикатов. М., Стройиздат, 1975. С. 173
4. Нормы радиационной безопасности НРБ-99/2009 Санитарные правила и нормативы СанПиН 2.6.1.2523-09
5. Постановление Главного государственного санитарного врача РФ от 26.04.2010 N 40 (ред. от 16.09.2013) «Об утверждении СП 2.6.1.2612-10 «Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности (ОСПОРБ-99/2010)
6. Федеральные нормы и правила в области использования атомной энергии. Сбор, переработка, хранение и кондиционирование жидких радиоактивных отходов. Требования безопасности (НП-019-15)
7. Федеральные нормы и правила в области использования атомной энергии. Критерии приемлемости радиоактивных отходов для захоронения (НП-093-14)
8. ГОСТ Р 51883-2002 Отходы радиоактивные цементированные. Общие технические требования
9. МИ-18-12 ФР 1.28.2012.13373 Методика измерений. Цементные компаунды на основе РАО. Определение предела прочности на разрывной машине марки ИР-5047-50С
10. МПИ-04-2015 Методика проведения испытаний. Цементные компаунды, содержащие РАО. Определение морозостойкости в климатической камере МК-53
11. ГОСТ Р 52126-2003 Отходы радиоактивные. Определение химической устойчивости отвержденных высокоактивных отходов методом длительного выщелачивания

**Хранение
и захоронение
радиоактивных
ОТХОДОВ**



УДК 621.039.743

Применение методов статистического анализа для определения миграции радионуклидов в хранилищах РАО приповерхностного типа

Веселова Е. С.

ФГУП «РАДОН»

e-mail:ESVeselova@radon.ru

Предложено для определения миграции радионуклидов внутри хранилища и за его пределы использовать опыт статистической обработки данных, накопленный в геологии. А, именно, изучение закономерностей статистического распределения полезных компонентов. Представлены результаты анализа данных обследования одного из хранилищ. Выявлены участки вероятного разрушения межсекционных перегородок внутри хранилища и наличия горизонтальных миграционных потоков.

Ключевые слова: хранилище РАО приповерхностного типа, защитные инженерные барьеры, цементная матрица, миграция радионуклидов, геохимическое поле, нормальное распределение, логнормальное распределение, критерий согласия, коэффициент корреляции

Statistical analysis methods application for the determination of the radionuclide migration in the near-surface storage facilities

Veselova E. S.

RADON FSUE

e-mail:ESVeselova@radon.ru

It is proposed to use the experience of statistical data processing accumulated in geology to determine the migration of radionuclides inside the repository and beyond it. Namely, the study of patterns of statistical distribution of useful components. The results of the analysis of survey data from one of the repositories are presented. Plots of probable destruction of intersection partitions inside the repository and the presence of horizontal migration flows are revealed.

Keywords: near surface type radioactive waste storage, protective engineering barriers, cement matrix, radionuclide migration, geochemical field, normal distribution, lognormal distribution, agreement criterion, correlation coefficient

В прошлом веке для долговременного хранения радиоактивных отходов низкого и среднего уровней активности широкое распространение получили хранилища приповерхностного типа. Хранилище РАО приповерхностного типа представляет собой бетонную или железобетонную конструкцию, расположенную ниже поверхности земли, разделенную на отсеки железобетонными плитами, часто имеющую бетонную стяжку в качестве днища. Радиоактивные отходы в такое хранилище загружались по отсекам послойно, свободное пространство и сами ТРО заливались цементным раствором. После заполнения, сверху хранилище перекрывалось железобетонными плитами, на которые укладывался слой асфальта. Таким образом, для приповерхностной изоляции РАО в качестве защитных барьеров выступают как вмещающие породы, так и инженерные барьеры: конструктивные элементы хранилища, цементная матрица, материал контейнера РАО (при наличии).

Задача этих барьеров:

- защитить хранилище и расположенные в нем РАО от неблагоприятного воздействия внешних природных фактов;
- предотвратить выход радионуклидов в окружающую среду.

На сегодняшний день возраст значительного числа этих сооружений составляет десятки лет. За годы эксплуатации защитные барьеры в ряде случаев утратили свои первоначальные физические характеристики и, вследствие этого, перестали выполнять изолирующие функции в необходимом объеме. В результате стало возможным как проникновение атмосферных осадков в хранилище, так и выщелачивание радионуклидов из матричного материала, перераспределение радионуклидов внутри хранилища, а также их миграция и вынос за пределы хранилища в грунты приконтурной зоны. Водопроницаемость инженерных барьеров хранилища предопределяет характер и интенсивность миграционных процессов внутри хранилища и за его пределами.

Насколько эти процессы будут характерны для того или иного хранилища зависит от множества конкретных условий. Для оценки безопасности отдельного хранилища важно, прежде всего, определить наличие или отсутствие самого факта нарушения герметичности хранилища, а при его обнаружении попытаться оценить его количественно (степень разрушения инженерных барьеров, интенсивность миграции радионуклидов) и качественно (какие именно барьеры и где разрушены).

На практике обследование состояния приповерхностных хранилищ РАО производится путем бурения скважин по самому хранилищу и грунтам приконтурной зоны. В процессе обследования проводится документация и отбор проб керна, вскрытой жидкой фазы; гамма-каротаж ствола сооруженных скважин; лабораторные исследования отобранных проб и гидрогеологические исследования. Полученные результаты позволяют сделать вывод о пространственном распределении радионуклидов внутри хранилища на момент исследования, наличии или отсутствии миграции радионуклидов из хранилища в приконтурную зону.

Но, т.к. данные о первичном распределении РАО внутри хранилища при его заполнении, как правило, отсутствуют, невозможно сделать оценку их перераспределения внутри сооружения за период хранения. Для этого необходимо проведение повторных опробований через определенный промежуток времени и сравнение полученных результатов. Наличие радионуклидов во вмещающих породах приконтурной зоны также не дает представления о динамике процесса. Вынос мог происходить в небольших количествах в течение 10-20 лет или процесс начался 2-3 года назад и развивается достаточно интенсивно. Для оценки безопасности хранилища важна именно динамика происходящих в нем процессов. Особенно важным является развитие процесса выщелачивания радионуклидов из цементной матрицы РАО и их перемещение, как внутри отсеков хранилища, так и за его пределы.

Геохимические процессы, происходящие в хранилище РАО и грунтах приконтурной зоны, аналогичны природным геохимическим процессам, протекающим в геологической среде. В связи с этим, для обработки и анализа результатов исследования состояния хранилищ РАО и вмещающих грунтов предложено использовать опыт изучения и прогноза развития геохимических процессов, накопленный в геологии. Недоступность геологических образований и процессов для непосредственного наблюдения обусловила широкое распространение в практике геологических исследований выборочных методов изучения. На их основе с использованием математического аппарата теории вероятностей и математической статистики разработаны методы статистического моделирования геологических объектов. Для нашего случая особый интерес представляет изучение закономерностей статистического распределения содержаний полезных компонентов.

По результатам статистической оценки геохимических параметров геологических объектов было установлено, что, как правило, нормальное распределение концентраций характерно для породообразующих, распространенных элементов, а концентрации редких химических элементов с кварками менее 0,05% распределяются по логнормальному закону. Так, например, для вулканогенных пород установлен нормальный тип распределения содержаний породообразующих элементов и логнормальный для редких элементов. Также была установлена связь характера статистических распределений содержаний компонентов в массиве с генезисом этого геологического образования. Нормальный закон распределения предполагает воздействие множества факторов, находящихся в аддитивных отношениях (результат воздействия равен сумме воздействия отдельных

факторов), в то время как при логнормальном распределении – имеет место мультипликативное взаимодействие геологических факторов (действие отдельных факторов влияет друг на друга и конечный результат зависит от эффектов на промежуточных этапах формирования объекта)[1].

Подобные закономерности прослеживаются и при изучении техногенных загрязнений, возникших под влиянием промышленных объектов за сравнительно небольшой (по сравнению с геологическими объектами) период времени [2,3].

Для хранилищ РАО приповерхностного типа формирование нового геохимического поля массива РАО происходит в условиях, соответствующих теоретической схеме возникновения логнормального распределения радионуклидов. Из этого можно сделать вывод о наличии связи между интенсивностью процессов миграции и свойствами геохимического поля, в частности, статистическими характеристиками распределения значений мощности амбиента эквивалентной дозы гамма излучения (МАЭД).

Степень близости эмпирического распределения к теоретическому логнормальному распределению значений МАЭД указывает на степень преобразования геохимического поля массива РАО и развития миграции радионуклидов. По мере развития миграции происходит изменение формы распределения, что позволяет оценить интенсивность и динамику миграции. Соответствие эмпирического распределения теоретическому определяется по критерию Пирсона (χ^2).

Подобная оценка была проведена по результатам обследований нескольких действующих хранилищ. В качестве примера приведем одно из них.

Это одноэтажное железобетонное сооружение, состоящее из 13 отсеков с толщиной стенок от 0,3 до 0,6 м. Сверху расположены монолитные плиты перекрытия, а также слой асфальта. РАО заключены в цементную матрицу. Используемая в то время технология создания матрицы заключалась в последовательном (последойном) цементировании слоев отходов, уложенных в отсеки. При этом высота слоя колебалась от 0,5 м до 1,0 м. Обследование проводилось с помощью скважин, пробуренных по хранилищу. Первоначально предусматривалось бурение 4 исследовательских и 124 технологических скважин глубиной до 4 м. Технологические скважины предназначены для ремонта хранилища способом повторного омоноличивания (закачки тампонажного раствора внутрь хранилища), однако на первом этапе позволяют получить достаточно обширную и детальную информацию о состоянии хранилища «изнутри». Замеры МАЭД в скважинах производились через каждые 0,25 м. Однако, по техническим причинам, фактическая сеть точек замера не соответствует проектной. В наибольшей степени нерегулярность сети скважин проявилась в нижней части массива.

Приведенное на рис. 1 распределение точек замеров МАЭД по глубинам и секциям позволяет оценить представительность выполненных оценок.

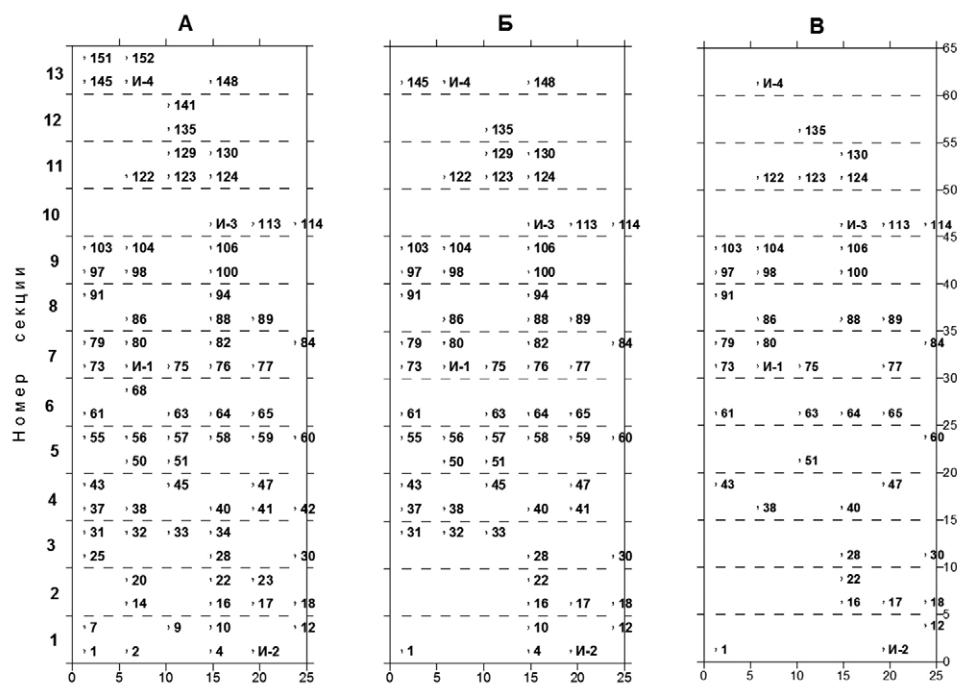


Рис. 1 – Расположение точек картожа по горизонтальным сечениям РАО глубиной 2м (А), 3м (Б) и 4м (В)

Исследование пространственного поля радиоактивности выполнено путем изучения изменчивости показателя МАЭД в плане и по глубине. В первую очередь следует отметить весьма неравномерное пространственное распределение значений и значительную изменчивость, как по глубине, так и в плане по горизонтальным сечениям. Распределение величины МАЭД по всей совокупности замеров представлено на гистограмме (рис. 2). Аномальные значения МАЭД занимают ограниченные по объему части массива. На каротажных диаграммах они соответствуют пикообразным всплескам ограниченной мощности. Это, например, можно наблюдать по скважинам, представленным на рис. 3.

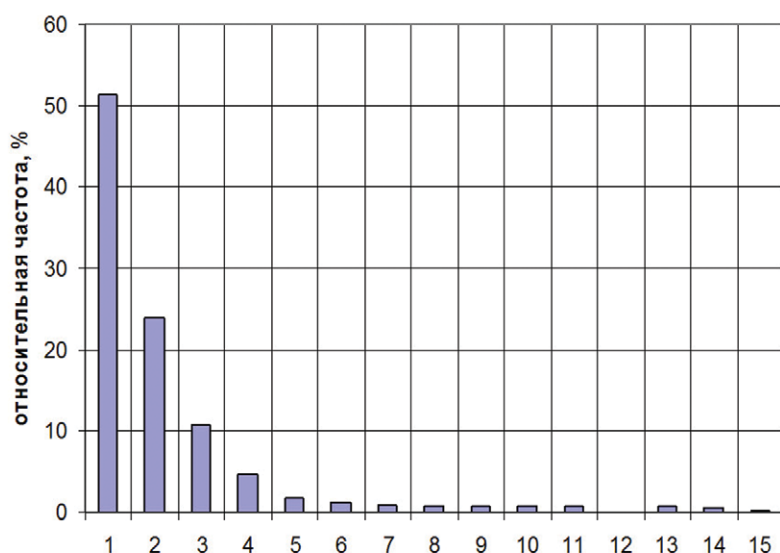


Рис. 2 Гистограмма распределения частот встречаемости групп по величине МАЭД $n \times 10^{-2} \text{ м}^3/\text{ч}$

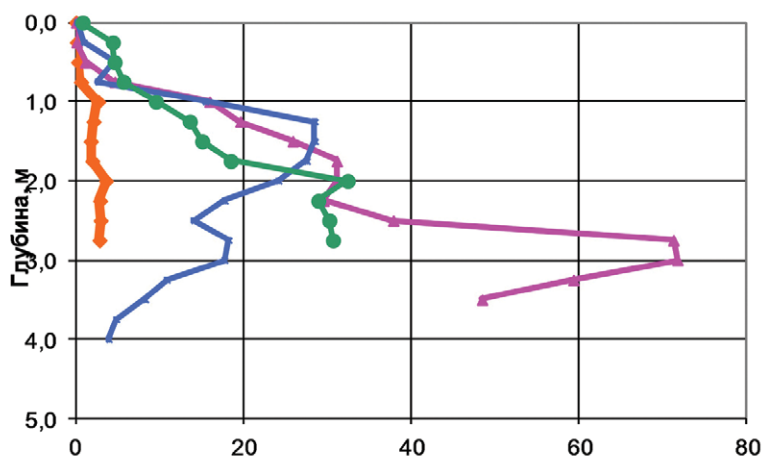


Рис. 3 Диаграммы гамма-каротажа технологических скважин, МАЭД $n \times 10^{-2} \text{ м}^3/\text{ч}$

Вычислены также средние значения показателя МАЭД по горизонтальным сечениям, горизонтам метровой мощности в границах участка и отдельных секций. Характер изменчивости этого показателя неодинаков на различных участках массива.

В таблице 1 приведены значения средних и стандартных отклонений по совокупностям значений МАЭД для отдельных секций хранилища.

Таблица 1

Средние значения МАЭД и стандартные отклонения их в пределах секций

№ секции	Средняя МАЭД по замерам, $n \times 10^{-2} \text{ м}^3/\text{ч}$	Стандартное отклонение значений МАЭД по замерам, $n \times 10^{-2} \text{ м}^3/\text{ч}$	Относительное стандартное отклонение значений МАЭД
1	14,41	33,61	2,33
2	34,61	52,50	1,52
3	12,86	17,03	1,32
4	35,09	65,06	1,85
5	122,86	137,97	1,12
6	67,85	61,13	0,90
7	49,78	49,51	0,99
8	26,14	19,58	0,75
9	54,03	104,78	1,94
10	25,34	15,47	0,61
11	37,82	59,73	1,58
12	89,30	101,21	1,13
13	78,29	78,66	1,00
По хранилищу	48,68	77,63	1,59

Величина относительного стандартного отклонения может быть показателем интенсивности миграционных процессов, а секции с высокими средней активностью и относительным стандартным отклонением следует рассматривать как наиболее опасные по выносу радионуклидов за пределы хранилища. Планы изолиний по сечениям массива на глубинах 2 м; 3 м; 4 м представлены на рис. 4.

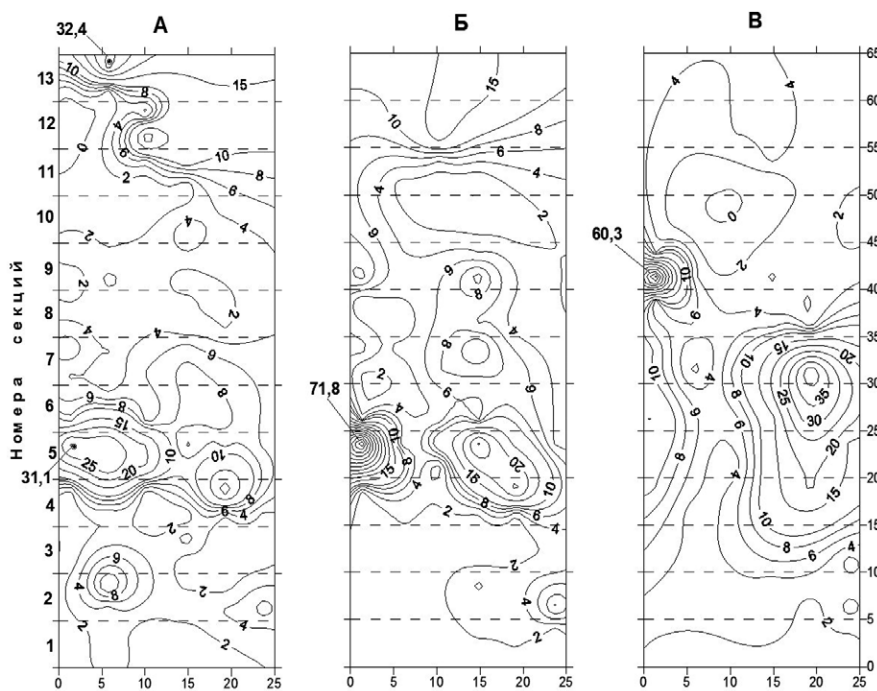


Рис. 4 План изолиний МАЭД ($n \times 10^{-2} \text{ м}^3/\text{ч}$) на горизонтальных сечениях массива РАО на глубинах 2 м (А), 3 м(Б) и 4 м(В)

В первую очередь следует отметить весьма неравномерное пространственное распределение значений мощности экспозиционной дозы и разный характер его изменчивости для различных участков хранилищ.

Четко выраженная анизотропия геохимического поля массива РАО указывает на преобладание погоризонтной миграции радионуклидов.

Контуры аномальных зон в плане часто пересекают границы секций, что указывает на сквозные миграционные потоки, а, следовательно, и на отсутствие герметичности некоторых межсекционных перегородок. Подтверждением тому служат результаты расчета коэффициентов корреляции между несколькими парами соседних скважин, расположенными в пределах одной секции или по разные стороны перегородок. Коэффициенты корреляции приведены в таблице 2. В расчетах использовались только данные по скважинам, имеющим глубину 4 м.

Таблица 2

Степень корреляции значений МАЭД по соседним скважинам

Расположение скважин	Через границу секций					В одной секции					
	T12 - T18	T22 - T28	T80 - T86	T91 - T97	T106 - Из	T16 - T22	T73 - T79	T97 - T103	T98 - T104	T100 - T106	T124 - T130
№№ скважин											
Коэффициент корреляции	0,31	0,39	0,38	0,72	0,10	0,82	0,77	0,47	0,73	0,47	0,73

Для большинства пар скважин, разделенных перегородками, коэффициенты корреляции не значимы, т.е. отсутствует взаимосвязь распределений активности по ним, а, значит, межсекционные перегородки герметичны. Однако в некоторых случаях (для пары скважин T91 и T97) достаточно высокий коэффициент корреляции 0,72 указывает на наличие интенсивных потоков миграции радионуклидов на этом участке из-за нарушения герметичности межсекционной перегородки между секциями 8 и 9. Т.о. по результатам расчета коэффициентов корреляции между соседними скважинами в пределах одной секции и по разные стороны перегородок, были выявлены участки вероятного разрушения межсекционных перегородок внутри хранилища и наличия миграционных потоков.

При анализе статистического распределения МАЭД по всем замерам по всему хранилищу получено значение критерия согласия χ^2 , вероятность которого не превышает 0,01, что не позволяет принять гипотезу о логнормальном распределении. Гистограмма значений логарифма МАЭД и сравнительное распределение интегральной плотности его распределения также указывают на несоответствие полученного эмпирического распределения логарифмов МАЭД по всему хранилищу нормальному закону. Аналогичные результаты получились и при анализе выборок по отдельным секциям по глубине хранилища. Этот факт свидетельствует об отсутствии значимой вертикальной миграции радионуклидов, как по отдельным секциям, так и по всему хранилищу в целом.

Для более детального исследования структуры массива аналогичные статистические исследования были проведены для совокупностей замеров по горизонтальным сечениям, расположенным на глубинах 0,5 м; 1,0 м; 1,5 м; 2,0 м; 2,5 м; 3,0 м; 3,5 м и 4,0 м.

Полученные результаты указывают на хорошее приближение рассматриваемых множеств значений МАЭД к логнормальному распределению по большинству горизонтальных сечений. Это указывает на значительное развитие горизонтальных миграционных процессов в массиве РАО. В то же время их интенсивность местами резко изменяется по глубине. Особенно отчетливо это наблюдается в интервале глубин 1,5-2,0 м. Максимальная «проработанность» всего массива отмечена на глубине 2,0м, а на глубине 1,5 м – минимальная.

На глубине 1,5 м гистограмма имеет двумодальную форму, что указывает на присутствие двух независимых распределений, одно из которых вероятно связано с реликтами геохимического поля, сформировавшегося при первичной загрузке отходов, другое же отражает пространственное распределение, возникшее под воздействием последующей миграции радионуклидов. В тоже время были выявлены участки с четкой многомодальностью гистограмм, что указывает на высокую неоднородность исследуемых значений. На этих участках массив РАО сохранил черты первичной неоднородности, что свидетельствует об отсутствии перераспределения радионуклидов и «сглаживающего» действия миграции.

Таким образом, массив РАО рассматриваемого хранилища обладает повышенной проницаемостью в интервале глубин 2-4м. По-видимому, преобладающее направление миграционных потоков имеет горизонтальную ориентировку, а формирование новых геохимических полей происходит преимущественно по относительно маломощным горизонтальным слоям.

Заключение

Предлагаемый способ проведения статистических исследований может быть выполнен не только для значений МАЭД, но и для других характеристик геохимического поля массива РАО (при достаточном объеме первичных данных для анализа).

Он позволяет одновременно, без дополнительных производственных затрат получить более полные данные о состоянии массива РАО и оценить наличие и интенсивность миграционных процессов на разных участках хранилища. Это позволяет оценить степень сохранности конструктивных элементов хранилища в целом, а также на отдельных участках, и сделать вывод о потенциальной угрозе объекта для окружающей среды.

Список литературы

1. Ярошевский, А.А. *Применение математики в геохимии: некоторые типы задач и методы решения.* // СОЖ. – 1996. – №7. – С. 67-73.
2. Новиков, А.П., Павлоцкая Ф.И., Горяченкова Т.А. и др. *Содержание и распределение радионуклидов в воде и донных отложениях некоторых промышленных водоемов ПО «Маяк».* // Радиохимия. – 1998. – Т. 40. – № 5. – С. 453-456.
3. Водяницкий, Ю. Н., Большаков В.А., Сорокин С.Е., Фатеева Н.М. *Техно-геохимическая аномалия в зоне влияния Череповецкого металлургического комбината* // Почвоведение. – 1995. - №4. – С.498-507.

УДК 621.039.75

Модификация грунтов приконтурной зоны хранилищ приповерхностного типа

Ильев А.А.

ФГУП «РАДОН»

e-mail: AAIlyev@radon.ru

В статье рассмотрен опыт ФГУП «РАДОН» по применению системы обеспечения экологической безопасности хранилищ приповерхностного типа, основанной на контроле состояния защитных барьеров и поддержании их эффективности. Одним из путей повышения экологической безопасности хранилищ РАО является снижение проницаемости пород приконтурной зоны хранилища, образующих естественный защитный барьер. Это может быть достигнуто путем модификации грунтов приконтурной зоны. Использование этой технологии позволило снизить коэффициент фильтрации грунтов приконтурной зоны со средних значений 10^{-2} до значений 10^{-4} - 10^{-5} м/сут, что сопоставимо с коэффициентом фильтрации суглинков естественного сложения, а это позволяет констатировать создание противодиффузионного экрана, препятствующего миграционным процессам.

Ключевые слова: эксплуатация хранилищ, инженерные барьеры, экологическая безопасность, модификация грунтов

Soil modification of the marginal zone of near-surface storages

Ilyev A. A.

RADON FSUE

e-mail: AAIlyev@radon.ru

The article describes the experience of the Federal State Unitary Enterprise RADON in the application of a system for maintaining environmental safety of subsurface storage facilities, based on monitoring the state of engineering barriers and maintaining their effectiveness by restoring the integrity of the cement matrix, including RW. One of the ways to improve the environmental safety of RW storage facilities is to use the technology for modifying the soils of the marginal zone. The soil filtration coefficient was reduced from average values of 10^{-2} to values of 10^{-4} - 10^{-5} m / day. This is comparable with the filtration coefficient of natural addition loams, and this allows us to state the creation of an impervious screen that impedes migration processes.

Keywords: storage operation, engineering barriers, environmental safety, soil modification

На территории НПК ФГУП «РАДОН» расположено значительное количество «исторических» хранилищ приповерхностного типа, которые эксплуатируются с шестидесятых годов XX века. **Хранилища этого типа представляют собой заглубленные в породный массив сооружения, выполненные из железобетонных блоков.**

По потенциальной опасности эти хранилища отнесены к II категории в соответствии с ОСПОРБ-2010. Статус хранилищ приповерхностного типа определен как временные хранилища со сроком хранения отходов не менее 50 лет, но при проведении работ по поддержанию их экологической безопасности, допускается увеличение срока их эксплуатации на срок до 300 лет.

Экологическая безопасность эксплуатации этих хранилищ обеспечивается комплексом защитных барьеров, включающим систему инженерных барьеров, образованную цементной матрицей, расположенной внутри хранилища и вмещающей РАО, и конструктивными элементами хранилища, а также естественный барьер – породы вмещающего массива.

В ходе эксплуатации хранилищ, под воздействием временных, внешних и внутренних факторов, происходит постепенная деградация защитных барьеров, приводящая к повышению их проницаемости. Эта деградация изменяет характер и увеличивает интенсивность миграционных процессов как внутри хранилища, так и за его пределами, а результатом этого является снижение экологической безопасности хранилища.

В ФГУП «РАДОН» разработана и широко применяется система поддержания экологической безопасности хранилищ приповерхностного типа, основанная на контроле состояния инженерных барьеров и поддержании их эффективности путем восстановления целостности цементной матрицы, включающей РАО. Однако проведенные в последние годы исследования показали, что естественный барьер с течением времени оказывает все большее влияние на экологическую ситуацию вокруг хранилища. Это связано с особенностью естественного барьера хранилищ приповерхностного типа является то, что он представлен в основном техногенными грунтами, которыми осуществлялась заполнение пазух котлована в процессе сооружения хранилища, а послойное уплотнение этих грунтов, осуществляемое в процессе укладки, как показали исследования, не обеспечивает поддержание необходимой водонепроницаемости во времени.

Таким образом, обеспечение экологической безопасности хранилищ приповерхностного типа в процессе их эксплуатации может быть обеспечено только путем сохранения эффективности и качества функционирования всего комплекса защитных барьеров. Применительно к естественному барьеру проведение таких работ позволит локализовать миграцию радионуклидов непосредственно в хранилище, а это исключит загрязнение вмещающего породного массива при любых нештатных ситуациях в хранилище.

В горном деле и при строительстве различных объектов, в том числе и в атомной промышленности, широко применяются защитные противодиффузионные экраны различных конструкций и методов создания. Анализ мирового и отечественного опыта создания таких экранов, применительно к конкретным условиям НПК ФГУП «РАДОН» показывает, что для условий НПК наиболее перспективным является технология создания противодиффузионного экрана (естественного барьера) путем модификации грунтов приконтурной зоны хранилища. Эта технология позволяет исключить миграцию радионуклидов из хранилища в породы за счет снижения проницаемости самого вмещающего массива, не нарушая его вскрышными работами. Преимущество технологии модификации заключается в том, что она позволяет обеспечить создание противодиффузионного экрана (барьера) на базе самих этих пород, путем снижения их проницаемости непосредственно у экранируемого объекта. Кроме того, модификация осуществляется за счет нагнетания через систему технологических (нагнетательных) скважин, не критично нарушающих сложившуюся целостность структуры модифицируемого массива. В результате, работы по созданию противодиффузионного экрана по этой технологии менее трудоемки и экологически безопасны по сравнению с другими технологиями, а получаемый результат соизмерим по эффекту.

Таким образом, именно модификация грунтов приконтурной зоны хранилища, по нашему мнению, может стать составной частью комплексной технологии повышения экологической безопасности хранилищ РАО приповерхностного типа.

Определенной сложностью в этой работе явилось то, что модификация грунтов широко используется во всем мире в дорожном и аэродромном строительстве, но нет информации об ее использовании в атомной промышленности, тогда как противодиффузионные экраны в ней применяются повсеместно. В связи с этим перед началом опытно-промышленных испытаний был проведен комплекс лабораторных работ, в ходе которых: оценивалась возможность использования технологии модификации для создания эффективного экрана в приконтурной зоне хранилища; исследовались различные модифицирующие материалы и параметры модифицирующего раствора; разрабатывались технологические решения его применения.

Лабораторные работы по исследованию возможности применения полимерной дисперсии для создания противодиффузионных экранов из пород образующих естественный защитный барьер производились на

специальной лабораторной установке, позволяющей моделировать процесс закачки модифицирующих растворов в породный массив через технологические скважины. Схема лабораторной установки показана на рисунке 1. Лабораторная установка включает: мерную емкость (1), фильтрационную колонку (2), нагнетательную линию (3), и гидropневматический насос (4), который состоит из корпуса (5), клапана сброса давления (6), ручного насоса (7) и манометра (8).

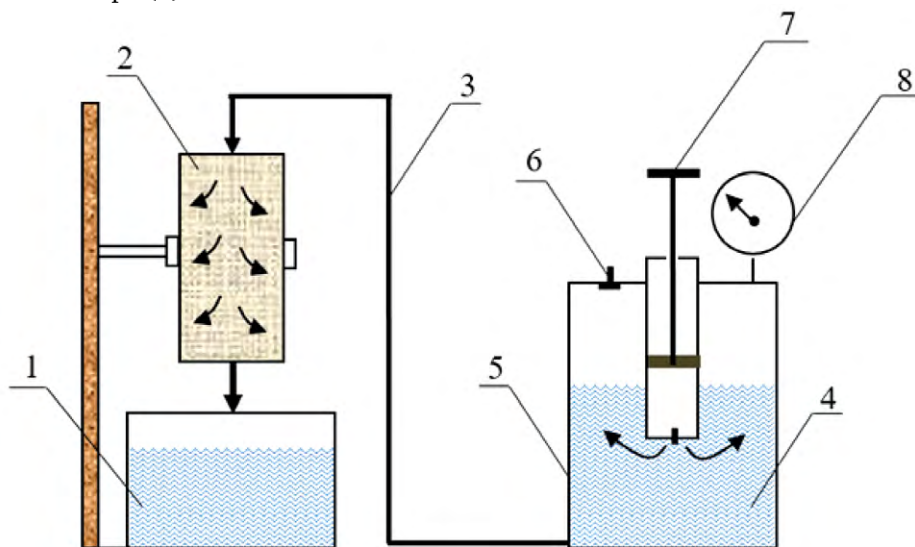


Рис 1 Схема лабораторной установки

Фильтрационная колонка состоит из корпуса и двух крышек. Корпус фильтрационной колонки собирается из патрубков диаметром 60×3мм и длиной 100-150 мм, имеющих резьбовые соединения. Для соединения патрубков используются муфты. Герметизация резьбовых соединений производится с помощью силиконового герметика.

При проведении эксперимента фильтрационная колонка устанавливается вертикально с помощью штатива. Нижняя часть фильтрационной колонки на высоту 500-1000 мм заполняется суглинком. Верхняя часть фильтрационной колонки заполняется водой и производится водонасыщение образца суглинка путем прокачки воды. После окончания водонасыщения суглинка вода из фильтрационной колонки удаляется, производится заполнение фильтрационной колонки модифицирующим раствором и прокачка модифицирующего раствора через образец суглинка. Прокачка осуществляется путем подачи в фильтрационную колонку сжатого воздуха с помощью ручного насоса 7 (рисунок 1).

По окончании прокачки модифицирующего раствора нижняя (грунтовая) часть фильтрационной колонки разбирается на секции и производится прокачка воды через каждую секцию. Прокачка осуществляется путем подачи в каждую секцию воды с помощью гидropневматического насоса.

Цикл работ по проведению единичного эксперимента включает:

- подготовку лабораторной установки к работе;
- заполнение корпуса фильтрационной колонки грунтом;
- прокачку через фильтрационную колонку воды;
- определение ее расхода и напора;
- расчет начального коэффициента фильтрации;
- приготовление технологического раствора;
- прокачку раствора через фильтрационную колонку;
- определение показателей расхода и напора в процессе прокачки раствора;
- расчет показателей коэффициента фильтрации в процессе прокачки раствора;
- разборку фильтрационной колонки на отдельные секции;
- прокачку через каждую секцию фильтрационной колонки воды с определением значений ее расхода и напора;
- расчет показателей коэффициента фильтрации для каждой секции фильтрационной колонки;
- извлечение образцов грунта из секций фильтрационной колонки и их визуальный осмотр.

Данный порядок проведения работ позволяет определять размер зоны снижения коэффициента фильтрации грунта и исследовать характер изменения степени снижения коэффициента фильтрации грунта в зависимости от размера зоны.

Лабораторные гидродинамические исследования производились при давлении 1,0 – 5,0 кг/см², что соответствует давлению, достигаемому при закачке модифицирующих растворов в практике проведения опытно-промышленных работ.

Анализ результатов проведенных лабораторных работ показал, что наиболее высокая эффективность модификации грунтов достигается при использовании раствора полимерной дисперсии «Novopol 006С» производимой химическим холдингом ООО «ХОМА» при ее концентрации в технологическом растворе 650 л/м³. Кроме того, была определена величина радиуса зоны снижения коэффициента фильтрации грунта при этой концентрации, которая составила 0,85 м.

При данной концентрации величина радиуса зоны снижения коэффициента фильтрации грунта достигает максимального значения

Однако в процессе анализа последних рыночных предложений осуществленного в ходе закупки полимерной дисперсии, необходимой для производства работ, по критерию минимальной стоимости, была выбрана полимерная дисперсия «Акрилан 103» производства компании «Акрилан», имеющая аналогичную техническую характеристику, но более низкую стоимость.

Техническая характеристика полимерных дисперсий «Акрилан 103» и «Novopol 006С» приведена в таблице 1.

Таблица 1

Техническая характеристика полимерных дисперсий «Акрилан 103» и «Novopol 006С»

Показатели	Акрилан 103	Novopol 006С
Внешний вид	Жидкость белого цвета	Беловато-опалесцирующая жидкость
Содержание нелетучих веществ, мас. %	30	32
Плотность, г/см ³	1,04	1,01
Минимальная температура пленкообразования, °С	13 – 19	5
Размер частиц, мкм	0,06 – 0,065	0,03 – 0,06

Анализ данных, представленных в таблице 1, показывает, что по технической характеристике полимерная дисперсия «Акрилан 103» близка к полимерной дисперсии «Novopol 006С». Поэтому было принято решение использовать в опытно-промышленных работах по модификации грунтов технологический раствор полимерной дисперсии «Акрилан 103» с концентрацией в растворе 650 л/м³, без полномасштабного лабораторного исследования эффективности действия этой полимерной дисперсии. В тоже время, в связи с тем, что эффективность действия полимерной дисперсии «Акрилан 103» в лабораторных условиях не исследовалась, для повышения надежности сооружаемого барьера при закачке данной полимерной дисперсии величина радиуса зоны снижения коэффициента фильтрации была сокращена и принята равной 0,5 м. Изложенное выше позволило установить оптимальное расстояние между технологическими скважинами составившее 1,0 м при проведении опытно-промышленных работ.

Таким образом, в процессе лабораторных работ: была доказана возможность использования технологии модификации грунтов полимерной дисперсией для повышения эффективности естественного барьера; исследована степень влияния концентрации полимера и размера частиц полимерных дисперсий на эффективность их применения; определена оптимальная концентрация полимерной дисперсии в технологическом растворе; определена величина радиуса зоны снижения коэффициента фильтрации грунта.

Для проведения опытно-промышленных полевых испытаний технологии модификации на основании результатов мониторинга, был выбран загрязненный участок приконтурной зоны хранилища, на котором были проведены подготовительные работы.

На основании анализа радиационной ситуации на выбранном участке и в соответствии с определенной вероятной зоной распространения модифицирующего раствора при нагнетании его в окружающую среду –

суглинки, была разработана схема расположения технологических скважин, приведенная на рисунке 2. На основании результатов лабораторных исследований расстояние между технологическими скважинами было определено в 1 м, а их количество, исходя из протяженности загрязненного участка, составило 7. Глубина технологических скважин была принята в соответствии с интервалом распространения загрязнения в очаге загрязнения, определенном в результате проведенных исследований в ранее пробуренных скважинах, и составила 7,0 м.

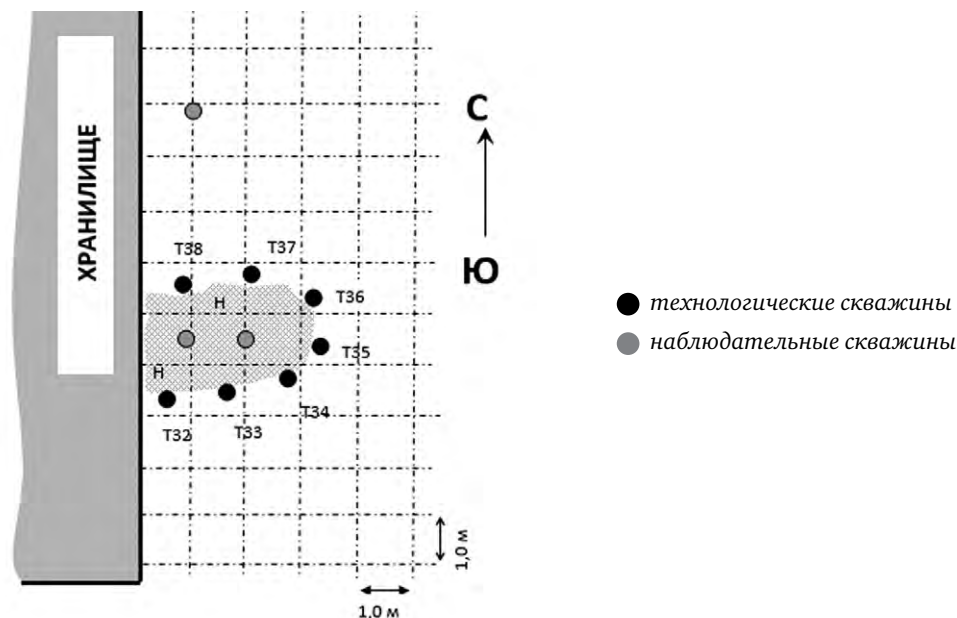


Рис 2 План локализации очага загрязнения приконтурной зоны

Бурение технологических скважин осуществлялось с помощью буровой установки «CEDIMA» Р-6000. Диаметр бурения составлял 70 мм, скважины обсаживались трубами ПВХ диаметром 50 мм, а на интервале 1-6 м у обсадной трубы оборудовался щелевой фильтр. Конструкция технологической скважины представлена на рисунке 3. Опытно-фильтрационные исследования были произведены во всех технологических скважинах.

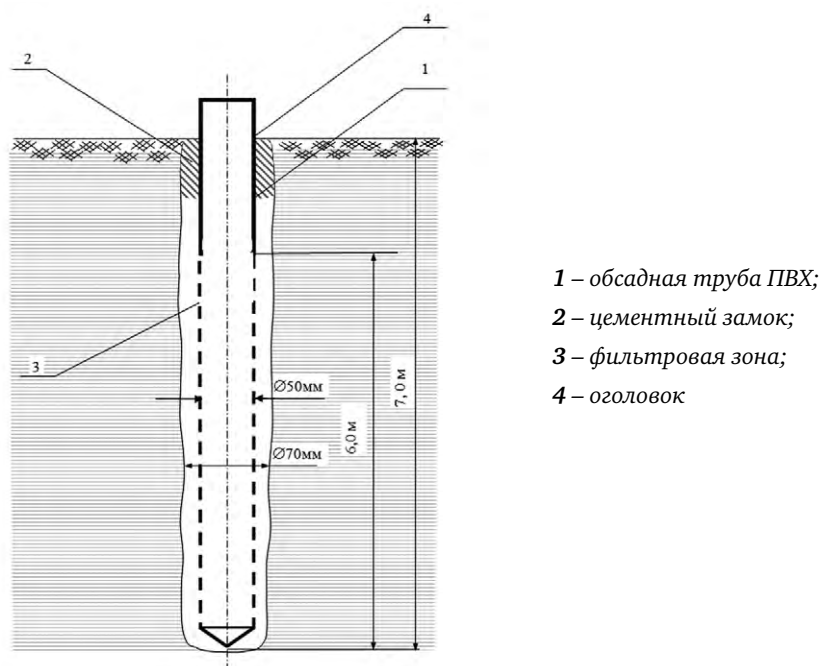


Рис 3 Конструкция технологической и мониторинговой скважин

Нагнетание модифицирующего раствора проводилось по схеме: «емкость с раствором – насос – скважина». Для нагнетания использовался насос РGP35-5. Как уже отмечалось в качестве модифицирующего раствора использовался раствор полимерной дисперсии «Акрилан 103» в концентрации 650 л/м³.

Результаты наблюдения, выполненные в ходе процесса нагнетания, показывают, что распространение модифицирующего раствора происходило по всей зоне расположения данных скважин (приконтурной зоне хранилища), о чем свидетельствовало повышение уровня жидкости в соседних скважинах и выход жидкости у их устья.

Оценка качества и эффективности проведенных работ проводилась по результатам опытно-фильтрационных исследований грунтов приконтурной зоны хранилища, производимых в технологических и наблюдательных скважинах. Критерием качества полученного экрана являлась степень снижения коэффициента фильтрации слагающих его грунтов, достигнутая в процессе модификации. Коэффициент фильтрации определялся методом экспресс-наливов в технологические скважины.

В таблице 2 представлены значения коэффициентов фильтрации грунтов до и после модификации.

Таблица 2

Значения коэффициентов фильтрации грунтов до и после модификации

№ скв.	Коэффициент фильтрации до модификации, м/сут	Коэффициент фильтрации после модификации, м/сут	Степень снижения коэффициента фильтрации
T32	3,08 E-2	7,81 E-05	394
T33	8,05 E-3	9,20 E-05	87
T34	3,17 E-3	1,06 E-04	30
T35	3,30 E-2	1,09 E-04	303
T36	3,32 E-2	1,42 E-04	234
T37	4,93 E-2	1,70 E-04	290
T38	3,68 E-2	1,62 E-04	228

В заключении можно сделать следующие выводы:

В соответствии с планом работ в ФГУП «РАДОН» были проведены опытно-промышленные работы, в результате которых локализован очаг загрязнения грунтов в приконтурной зоне хранилища. Локализация осуществлена путем создания в приконтурной зоне противофильтрационного экрана со сниженным коэффициентом фильтрации, достигнутым обработкой (модификацией) грунтов раствором полимерной дисперсии «Акрилан 103».

Полученные в процессе выполненных работ данные показывают, что после проведенной модификации грунтов в ближней зоне вокруг очага загрязнения снижение коэффициента фильтрации грунтов составило от 30 до 394 раз.

В процессе модификации коэффициент фильтрации грунтов приконтурной зоны, был снижен со средних значений 10⁻² до значений 10⁻⁴- 10⁻⁵ м/сут, что сопоставимо с коэффициентом фильтрации суглинков естественного сложения, а это позволяет констатировать создание противофильтрационного экрана, препятствующего миграционным процессам. Выполненные работы показывают эффективность применения технологии модификации грунтов для повышения экологической безопасности хранилищ РАО.

Список литературы

1. Федеральный закон «Об охране окружающей среды» от 10.01.2002 №7-ФЗ
2. ТУ 5711-001-98983709-2007. «Грунтовые смеси, обработанные добавками для автодорожного и аэродромного строительства». – М.: ФГУП «Рособоронстандарт», 2009. – 30 с.
3. СТО НОСТРОЙ 2.25.30-2011 «Строительство оснований из укрепленных грунтов»
4. ГОСТ 30491-97. «Смеси органоминеральные и грунты, укрепленные органическими вяжущими, для дорожного и аэродромного строительства. Технические условия» ГОСТ 23558-94. «Смеси щебеночно-гравийно-песчаные и грунты, обработанные неорганическими вяжущими материалами, для дорожного и аэродромного строительства. Технические условия».
5. ОДМ 218.1.004-2011 «Классификация стабилизаторов грунтов в дорожном строительстве»
6. Марков Л. А. Улучшение свойств грунтов поверхностно-активными и структурообразующими веществами. М.: Автотраниздат, 1963. 134 с.
7. Безрук В. М. Укрепление грунтов в дорожном и аэродромном строительстве. М.: Транспорт, 1971. 247 с.
8. Особенности работы слабых глинистых грунтов В.В. Маскалева и В.Р. Мухамадиев ФГАОУ ВО «Санкт-Петербургский политехнический университет», 1952, Россия, Санкт-Петербург

Радиоэкологический мониторинг и радиационный контроль



УДК 577.34:574.24

Радиоэкологический мониторинг Московского региона

Цейтин К.Ф., Пташкин А.Г.

ФГУП «РАДОН»,

e-mail: kalman.06@bk.ru

Представлено описание основных особенностей Московской области как объекта радиационно-экологического мониторинга. Обеспечены основные конкретные направления работ по обеспечению радиационной безопасности города, в том числе комплексная система управления радиационной обстановкой города Москвы и Московской области и основные направления развития системы радиационной безопасности.

Ключевые слова: радиационный мониторинг, радиационная безопасность, радиационная обстановка

Radio-ecological monitoring of the Moscow region

Tseitin K.F., Ptashkin A.G.

RADON FSUE,

e-mail: kalman.06@bk.ru

The description of main features of the Moscow Region as an object of radiation and ecological monitoring is presented. The main specific directions of working activities for providing of radiation safety of the city, including complex control system of radiation environment of Moscow and the Moscow region and the main directions of development of the system of radiation safety providing.

Keywords: radiation monitoring, radiation safety, radiation environment

Государственная политика обеспечения радиоэкологической безопасности населения является важной современной задачей государства. Она представляет собой совокупность скоординированных и объединенных общим замыслом политических, экономических, инженерно-технических, социальных, правовых информационных и иных мер в области использования атомной энергии в мирных и оборонных целях, принимаемых органами государственной власти Российской Федерации, субъектов Российской Федерации, Госкорпорацией «Росатом», организациями и направленными на обеспечение национальных интересов, реализацию стратегических национальных приоритетов Российской Федерации, защиту жизни и здоровья граждан, собственности, а также на охрану окружающей среды.

Решение этой проблемы – есть принципиально важная и доминирующая задача в решении проблем экологической безопасности в целом, сохранения социально-политической и экономической стабильности общества. Ограничение радиационного воздействия на окружающую среду, минимизация последствий произошедших ранее радиационных аварий относятся к числу приоритетных направлений совместной деятельности государства и общества в экологической сфере.

Радиационная безопасность – составляющая часть экологической безопасности, один из интегральных критериев качества жизни и определяющих факторов успешного развития государства и общества. Согласно «Основам государственной политики в области обеспечения ядерной и радиационной безопасности Российской Федерации на период до 2025 года и дальнейшую перспективу», утвержденным Президентом РФ 13 октября 2018 года одно из важнейших направлений государственной политики – обеспечение эколого-радиационной безопасности населения.

Радиационная безопасность населения определяется не только проблемами атомной промышленности и энергетики, но и сотнями тысяч радиационных источников, которые использовались в промышленности, сельском хозяйстве, науке, медицине, учебных заведениях и т.д. В 90-х годах XX века произошел перedel собственности, репрофилирование деятельности многих предприятий, ушли квалифицированные специалисты, радиационное оборудование не используется, а сведения о нем зачастую утеряны. Но с течением времени проблема радиационной безопасности не теряет своей актуальности, так как предполагаемое развитие атомно-промышленного комплекса России, наукоемких технологий и производств неизбежно потребует усиления барьеров, предотвращающих попадание радиоактивных материалов в окружающую среду.

Экологическая ситуация в Московском регионе в силу ряда геологических и исторических причин, а также существующего спектра научно-исследовательских учреждений и промышленных предприятий характеризуется повышенным уровнем природного и техногенного факторов радиационного риска.

Почти за вековую историю ядерной эры на территории Москвы и Московской области накопилось значительное количество радиоэкологических проблем. До недавнего времени рост объемов радиоактивного загрязнения опережал скорость выявления и ликвидации участков радиоактивного загрязнения. Комплексный подход к решению радиоэкологических проблем был реализован Правительством Москвы и Московской области в последние годы.

Московский регион занимает одно из ведущих мест среди субъектов Российской Федерации по количеству радиационно и ядерно опасных объектов, радионуклидных и генерирующих источников на единицу площади. На ее территории расположено свыше 3-х тысяч предприятий и организаций различных форм собственности и ведомственной принадлежности, осуществляющих обращение с ядерными материалами (далее – ЯМ), радиоактивными веществами (далее – РВ), радиоактивными источниками (далее – РИ) и радиоактивными отходами (далее – РАО).

Распоряжением Правительства Российской Федерации от 14 сентября 2009 г. № 1311-р утвержден ПЕРЕЧЕНЬ организаций, эксплуатирующих особо радиационно опасные и ядерно опасные производства и объекты, 26 из них отнесены к предприятиям и организациям расположенных на территории Москвы и Московской области, том числе:

1. Открытое акционерное общество «ТВЭЛ», г. Москва;
2. Открытое акционерное общество «Машиностроительный завод», г. Электросталь, Московская область;
3. Открытое акционерное общество «Электрогорский научно-исследовательский центр по безопасности атомных электростанций», г. Электрогорск, Московская область;
4. Открытое акционерное общество «Ордена Ленина Научно-исследовательский и конструкторский институт энерготехники имени Н.А. Доллежала», г. Москва;
5. Открытое акционерное общество «Концерн по производству электрической и тепловой энергии на атомных станциях», г. Москва (филиалы – АЭС);

6. Открытое акционерное общество «Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов имени академика А.А. Бочвара», г. Москва;
7. Открытое акционерное общество «Ведущий научно-исследовательский институт химической технологии», г. Москва;
8. Открытое акционерное общество «Научно-исследовательский институт технической физики и автоматизации», г. Москва;
9. Открытое акционерное общество «Институт физико-технических проблем», г. Дубна, Московская область;
10. Открытое акционерное общество «Атомспецтранс», г. Москва;
11. Открытое акционерное общество «Всероссийское объединение «Изотоп», г. Москва;
12. Открытое акционерное общество Ордена Трудового Красного Знамени и ордена труда ЧССР опытное конструкторское бюро «ГИДРОПРЕСС», г. Подольск, Московская область;
13. Федеральное государственное унитарное предприятие «Всероссийский научно-исследовательский институт автоматики им. Н.Л. Духова», г. Москва;
14. Акционерное общество «Научно-исследовательский институт приборов», г. Лыткарино, Московская область (В редакции Постановления Правительства Российской Федерации от 20.12.2016 г. № 1405);
15. Акционерное общество «Государственный научный центр Российской Федерации Троицкий институт инновационных и термоядерных исследований», г. Москва (В редакции Постановления Правительства Российской Федерации от 09.10.2015 г. № 1082);
16. Федеральное государственное унитарное предприятие «Научно-исследовательский институт Научно-производственное объединение «ЛУЧ», г. Подольск, Московская область;
17. Федеральное государственное бюджетное учреждение «Государственный научный центр Российской Федерации – Институт Теоретической и Экспериментальной Физики», г. Москва (В редакции Постановления Правительства Российской Федерации от 25.04.2012 г. № 385);
18. Федеральное государственное бюджетное учреждение «Государственный научный центр Российской Федерации – Институт физики высоких энергий», г. Протвино, Московская область (В редакции Постановления Правительства Российской Федерации от 25.04.2012 г. № 385);
19. Открытое акционерное общество «Федеральный центр ядерной и радиационной безопасности», г. Москва (В редакции Распоряжения Правительства Российской Федерации от 03.12.2013г. № 2251-р);
20. Федеральное государственное унитарное предприятие «Предприятие по обращению с радиоактивными отходами «РОСРАО», г. Москва;
21. Федеральное государственное учреждение «Федеральный медицинский биофизический центр имени А.И. Бурназяна», г. Москва;
22. Федеральное государственное учреждение Российский научный центр «Курчатовский институт», г. Москва;
23. Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего профессионального образования «Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», г. Москва;
24. Федеральное государственное унитарное предприятие «Объединенный эколого-технологический и научно – исследовательский центр по обезвреживанию РАО и охране окружающей среды», г. Москва (В редакции Постановления Правительства Российской Федерации от 01.08.2013 г. № 655);
25. Хранилища радиоактивных отходов, радиационные источники федерального государственного унитарного предприятия «Объединенный эколого-технологический и научно-исследовательский центр по обезвреживанию РАО и охране окружающей среды», г. Москва;
26. Объединенный институт ядерных исследований, г. Дубна, Московская область;
27. Федеральное государственное унитарное предприятие «Национальный оператор по обращению с радиоактивными отходами», г. Москва (Дополнен – Распоряжение Правительства Российской Федерации от 04.06.2012 г. №903-р).

Примечание.

Эксплуатацию особо радиационно опасных и ядерно опасных производств и объектов осуществляют также: воинские части и организации Вооруженных Сил Российской Федерации, имеющие в своем составе ядерные боеприпасы, ядерные энергетические установки и ядерные исследовательские установки.

Источниками потенциальной радиационной опасности являются и имеющиеся на территории Московской области крупные радиационные захоронения, в том числе: полигон ТКО «Щербинка» (Домодедовский район), внутри которого расположен спецполигон РАО Подольского химико-металлургического завода; свалки твердых коммунальных отходов у озера «Солнечное» (Раменский район) и в Жостовском карьере (Мытищинский район); территория ОАО «Подольский завод цветных металлов» (Подольский район) и в г. Москве, в районе Сабурово, территория набережной правого берега Москвы-реки от железнодорожного моста Курского направления до д. 5 ул. Борисовские пруды[1-3].

Перечень объектов, использующих источники ионизирующего излучения и их общая характеристика приведена в таблице 1.

Ежегодно в Московском регионе регистрируется не менее 20 локальных радиационных инцидентов с источниками ионизирующего излучения, включая выявление локальных загрязнений местности, нештатных радиационных ситуаций при обращении с металлоломом.

Органами исполнительной власти Москвы и Московской области во взаимодействии с заинтересованными Федеральными органами исполнительной власти, органами местного самоуправления, а также специализированными организациями осуществляется целенаправленная деятельность, направленная на обеспечение ядерной и радиационной безопасности при использовании атомной энергии, в рамках компетенции, возложенной на них законодательством Российской Федерации [7-9].

Таблица 1

Объекты, использующие источники ионизирующего излучения

№	Виды организаций	Число организаций данного вида				Численность персонала			
		Всего	В том числе по категориям				Группы А	Группы Б	Всего
			I	II	III	IV			
1	Атомные электростанции	—							—
2	Геологоразведочные и добывающие	—			—		—		—
3	Медучреждения	1391				1391	10354	2387	12741
4	Научные и учебные	65		1	9	55	2907	604	3511
5	Промышленные	94			2	92	788	10	798
6	Таможенные	6				6	531		531
7	Пункты захоронения РАО	—		—					
8	Прочие особо радиационноопасные	4			3	1	788	609	1397
9	Прочие	254			1	253	4735	136	4871
	ВСЕГО	1814		1	15	1798	20103	3746	23849

На наш взгляд, логична последовательность построения системы понятий радиоэкологической безопасности: ценность – ущерб – опасность – безопасность. Не вызывает сомнений тот факт, что радиоэкологическую безопасность целесообразно исследовать и в контексте национальной безопасности.

Ситуация осложняется тем, что в столичный регион ежегодно ввозятся миллионы тонн различных грузов, среди которых регулярно обнаруживаются и материалы, загрязненные радиоактивными веществами.

Основными специфическими направлениями деятельности по обеспечению радиационной безопасности мегаполиса являются:

- инженерно-техническое обеспечение и научно-технологическое решение вопросов эколого-радиационной безопасности населения Московского региона;
- централизованный сбор, транспортирование, переработка, хранение радиоактивных отходов (РАО);
- проведение радиоэкологического мониторинга;
- проведение радиационного обследования строительных площадок и радиационный контроль строительных материалов;
- выявление на территории Московского региона и дезактивация участков радиоактивного загрязнения;
- эксплуатация и развитие Московской системы контроля радиационной обстановки, региональной системы учета и контроля радиоактивных веществ, системы учета и контроля индивидуальных доз облучения, составление радиационно-гигиенических Паспортов территории Москвы и Московской области.

Сегодня в сфере радиоэкологической безопасности есть определенные достижения: развиваются новые системы контроля, совершенствуются технологические процессы, формируются новые информационно - коммуникативные каналы взаимодействия со средствами массовой информации и общественностью.

Так, например, информационно-аналитическая поддержка по обеспечению радиационной безопасности населения, радиационно-экологическому и радиационно-гигиеническому мониторингу окружающей среды обеспечивается формированием радиационно-гигиенических паспортов города Москвы и Московской области [10-12].

Комплексная система контроля радиационной обстановки города Москвы приведена на рисунке 1.

Загрязнение атмосферы техногенными радионуклидами на территории Москвы, так же как и Российской Федерации, обусловлено ветровым переносом радиоактивных веществ с загрязненной в прошлые года почвы, глобальными выпадениями продуктов ядерных взрывов и радиационных аномалий.



Рис.1 Комплексная система контроля радиационной обстановки

Для контроля загрязнения атмосферы техногенными радионуклидами создано 85 постов системы АСКРО на территории города Москвы (рисунок 2) [4-6]. Радиационный контроль объектов окружающей среды в 2018 году продолжал осуществляться на всех основных объектах среды обитания человека специалистами ФГУП «РАДОН», ФГУЗ «Центры гигиены и эпидемиологии в городе Москве и Московской области», Комитетами по ветеринарии г. Москвы и области, ГУ МЧС России по г. Москве и области, Росгидромета по Москве и Московской области и др.

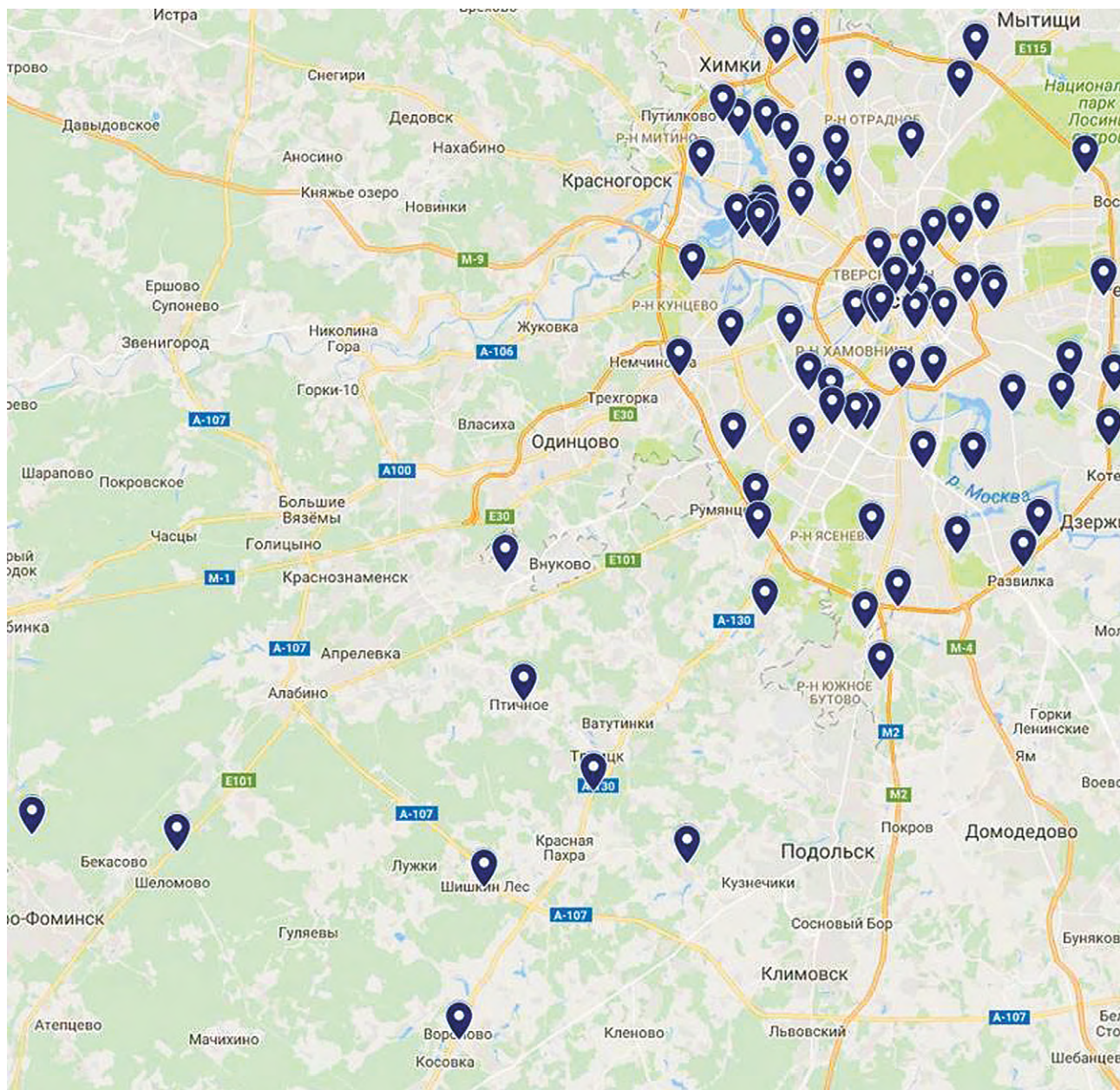


Рис. 2 Сеть стационарных пунктов радиэкологического мониторинга

Средние значения мощности экспозиционной дозы гамма-излучения на территории Московского региона за 2018г. изменялись в пределах от 9 до 14 мкР/ч, т.е. находились в пределах колебаний естественного радиационного фона. Среднегодовые значения суммарной бета-активности атмосферных выпадений за 2018 год варьировались от 0,33 до 0,42 Бк/м² в сутки.

Фоновые значения радиоактивного загрязнения почвы для территории Москвы и области в 2018 году, не превышали 1,25кБк/м² по ¹³⁷Cs и 0,11 по ⁹⁰Sr.

Радиационный контроль питьевого водоснабжения Москвы

В городе Москве питьевое водоснабжение осуществляется из поверхностных источников централизованного водоснабжения.

Удельная активность радионуклидов в воде открытых водоемов в местах водопользования населения по суммарной альфа- и бета-активности не превышали контрольных уровней и составили:

Суммарная альфа-активность – $1,66 \times 10^{-4}$ Бк/м²

Суммарная бета-активность – $1,35 \times 10^{-3}$ Бк/м²

Радиационное состояние реки Москвы

С целью получения радиоэкологических характеристик р. Москвы (в черте города) и оценки степени антропогенного воздействия на неё в период навигации 2018 года с помощью Мобильного водного комплекса радиационного контроля (МВК РК) были отобраны пробы поверхностных вод и донных отложений в 58 пунктах наблюдений.

Мобильный водный комплекс радиационного контроля представлен на рисунке 3.

Величина МЭД ГИ над поверхностью воды р. Москвы и Химкинского водохранилища изменялась в пределах от 0,09 до 0,12 мкЗв/ч. В центре города, где берега реки укреплены гранитными и железобетонными плитами и в шлюзах МЭД ГИ поднималась до 0,12 мкЗв/ч.



Рис. 3 Мобильный водный комплекс радиационного контроля

Результаты радиометрического анализа отобранных проб воды показали, что значение суммарной активности бета-излучающих радионуклидов в среднем составило 106 мБк/л ($\sigma = 66$ мБк/л). Максимальное значение отмечено около Печатников между шлюзами 10 и 11 (проба 3038) и составило 221 мБк/л.

Радиоактивность приземного слоя атмосферы и атмосферных выпадений

Радиоактивность аэрозолей приземного слоя атмосферы и атмосферных выпадений г. Москвы контролировалась в районах размещения СПРК, расположенных в различных городских зонах пяти административных округов:

- «лесопарковая зона» в САО, ЮВАО, ЮЗАО – СПРК-4, СПРК-1, СПРК-6;
- «промышленная зона» в САО – СПРК-3;
- «зона административно-жилищной застройки» в ЦАО, СЗАО – СПРК-2, СПРК-7.

Среднемесячные значения объемных концентраций радионуклидов в приземном слое атмосферы г. Москвы приведены в таблице 2.

Таблица 2

*Среднемесячные значения объемных концентраций радионуклидов
в приземном слое атмосферы г. Москвы*

Месяц	$\Sigma\beta$, Бк/м ³	⁷ Ве, Бк/м ³	⁴⁰ К, Бк/м ³
Среднее за 2018 г.	$1,4 \times 10^{-4}$	$3,1 \times 10^{-3}$	$2,6 \times 10^{-5}$

Радиоактивность травяного покрова

Отбор проб травяного покрова в пунктах режимной сети наблюдения окружающей среды производился на площади ~100 м² методом сплошного укоса. Отобранные пробы наземных частей травянистых растений после измельчения и озоления исследовались радиометрическим и гамма-спектрометрическим методами. Результаты измерений пересчитывались на килограмм сухой массы.

Значение удельной $\Sigma\beta$ -активности радионуклидов лежит в диапазоне от 50 до 1600 Бк/кг, при среднем значении 550 Бк/кг.

Значение удельной активности ⁴⁰К лежит в диапазоне от 200 до 1200 Бк/кг, при среднем значении 750 Бк/кг.

Значение удельной активности ⁷Ве лежит в диапазоне от 200 до 700 Бк/кг, при среднем значении 350 Бк/кг.

Значения удельной радиоактивности растительности города соответствуют значениям для Европейской территории России.

Радиоактивность пищевых продуктов

В 2018 году ФГУЗ «Центр гигиены и эпидемиологии в городе Москве» было исследовано более 500 проб пищевых продуктов на содержание радиоактивных веществ. Превышения гигиенических нормативов за указанный период времени не зарегистрированы.

Удельная активность радиоактивных веществ в пищевых продуктах, Бк/кг

по ¹³⁷Cs: молоко – 0,67; мясо – 0,49; рыба-0,3; грибы лесные – 2,4.

по ⁹⁰Sr: молоко – 0,62; мясо – 0,19; рыба-0,7; ягоды лесные – 0,1.

Изъяты ветнадзором продукты растительного происхождения в количестве 515,712 кг с превышением установленных нормативов по ¹³⁷Cs:

- лесные ягоды (черника, клюква, брусника) от 570,2 до 742 Бк/кг,
- грибы свежие – от 1581 до 2021 Бк/кг,
- захоронены установленным порядком во ФГУП «РАДОН».

Согласно сведениям Управления Роспотребнадзора по городу Москва ведущим фактором облучения населения Москвы являются природные источники, их вклад в среднем по городу составляет 84,17% от коллективной дозы облучения.

Более половины вклада в дозу облучения населения за счет природных источников определяют изотопы радона, находящиеся в воздухе помещений. Групп населения с эффективной дозой за счет природных источников выше 5 мЗв/год на территории Москвы не зарегистрировано.

В 2018 году общее количество исследований ЭРОА радона по сравнению с 2017 годом уменьшилось, что связано с изменением порядка ввода в эксплуатацию зданий, установленного в градостроительном кодексе.

Превышение гигиенического норматива ЭРОА радона для строящихся жилых и общественных зданий (более 100 Бк/м³) отмечено в 24 измерениях – точках. В 3 точках значения ЭРОЭ радона выше 200 Бк/м³. Органами санитарного надзора сделаны предложения по проведению радоно защитных мероприятий.

Техногенные источники радиоактивного загрязнения

Как и в предыдущие годы, определенный вклад в дозовую нагрузку населения вносят промышленные предприятия, строительные, научно-исследовательские и другие учреждения, применяющие в своей работе источники ионизирующего излучения (ИИИ). Специалистами ФГУП «РАДОН» при проведении плановых радио-экологических работ выявлены и ликвидированы техногенные загрязнения в городе Москве.

Обращение с радиоактивными отходами

Радиоактивные отходы (РАО), образующиеся на территории города Москвы, вывозятся на захоронение в специализированный (региональный) пункт хранения ФГУП «РАДОН».

Радиационная обстановка на площадке ФГУП «РАДОН» контролируется специалистами предприятия с привлечением аккредитованных в установленном порядке лабораторий радиационного контроля.

Организация деятельности регионального информационно-аналитического центра учета и контроля радиоактивных веществ и радиоактивных отходов

Органом управления системой учета и контроля РВ и РАО на федеральном уровне является Государственная корпорация по атомной энергии «Росатом» (Госкорпорация «Росатом»). Функции информационно-аналитического центра учета и контроля РВ и РАО на федеральном уровне выполняло ЦИАЦ СГУК РВ и РАО ФГУП «РосРАО» г. Москва.

Государственный учет и контроль радиоактивных веществ и радиоактивных отходов (РВ и РАО) города Москвы проводится специалистами РИАЦ ФГУП «РАДОН».

Основные направления работы по обеспечению радиационной безопасности в Московском регионе:

- организация работы по контролю за природными источниками ионизирующего излучения, разработка мероприятий по снижению доз облучения населения от природных источников, обеспечение надзора за содержанием радона в жилых общественных зданиях;
- осуществление 100% охвата организаций, работающих с источниками ионизирующего излучения, радиационно-гигиенической паспортизацией;
- сокращение количества радиационно опасных объектов повышенного риска;
- принятие концепции и законов города Москвы и области «О радиационной безопасности населения города Москвы и Московской области»;
- заключение Договора Правительства Московской области с ФГУП «РАДОН» на проведение РЭМ и утилизацию выявленных РАО.

Выбросы радиоактивных веществ в окружающую среду за отчетный период отсутствовали.

Для ликвидации радиационных аварий и происшествий в Москве имеются подготовленные к немедленному реагированию подразделения средств и сил ГУ МЧС России по г. Москве и Московской области и ФГУП «РАДОН».

Список литературы

1. Постановление Правительства Москвы «О дополнительных мерах по обеспечению радиационной безопасности в городе Москве» № 878-ПП от 09 октября 2007 г.
2. Постановление Правительства Москвы «Об организации Единой системы экологического мониторинга г. Москвы» № 144 от 22.02.2000 г.
3. Постановление Правительства Москвы «О порядке выявления, учета и использования участков территорий, подвергшихся техногенному радиоактивному загрязнению, и обеспечении радиационной безопасности при проведении строительных и других земляных работ на территории г. Москвы» № 553 от 20.06.95 г.
4. Радиационный контроль металлолома. Методические указания. МУК 2.6.1.1087-02. [Электронный ресурс]. URL:
5. Способ радиоэкологического мониторинга промышленного региона, его структура и контролируемые параметры защищены патентом Российской Федерации М 2112999 от 21.05. 97 г., принадлежащим ГУП МосНПО «Радон».
6. Соболев А.И., Лузин В.И. Единая информационно-аналитическая система радиационно-экологической безопасности ФГУП «РосРАО», Безопасность Окружающей Среды №1-2010: Обращение с ОЯТ;
7. Цейтин К.Ф. Проблемы экологической безопасности Московской области и пути их решения // Материалы 3-й Московской областной науч.-практ. конф. «Экологическая безопасность региона». - М., 2002. - с.12-15.
8. Цейтин К.Ф. и др. Экологическая безопасность: ядерная и радиационная. Учебное пособие. Электронное мультимедийное пособие.-М.,РГСУ,2016, 243МБт.
9. Цейтин К.Ф., Гильденскиольд С.Р. Организация работы и подготовка учреждений сети наблюдения и лабораторного контроля на территории Московской области. Методические указания.-М,РПП»Этон-2»,1998, 98с
10. Безопасность Окружающей Среды №1-2010: Обращение с ОЯТ 91 Распоряжение Правительства Москвы «Об усилении радиационного контроля при проведении строительных и иных земляных работ на территории г. Москвы» № 961-РЗП от 05.10.95г.
11. «Контрольные уровни обеспечения радиоэкологической безопасности населения г. Москвы». Утв. Правительством Москвы от 19.11.2008 г., М., 2008, 20 с.
12. Современные методы обеспечения экологической безопасности Московской области. Часть1.Радиационная безопасность. Издательство «Подмосковье», г. Подольск, 2013

УДК 621.039.613.5

Применение интегральных методов для радиационного контроля детских образовательных учреждений

Закотеев Ю.А.
ФГУП «РАДОН»
e-mail: louvaahmar@gmail.com

Данная работа посвящена вопросам применения интегральных методов и средств измерений объёмной активности радона, в частности трекового метода на примере комплекта аппаратуры ТРЕК-РЭИ-1М, для проведения радиационно-экологических обследований помещений детских образовательных учреждений.

Ключевые слова: фоновое гамма-излучение, изотопы радона, радиометры, интегральные измерения, трековый метод, эффект фединга

The use of integral methods for radiation monitoring of children's educational institutions

Zakoteev Y.A.
RADON FSUE
e-mail: louvaahmar@gmail.com

This work is devoted to the use of integral methods and measuring instruments for measuring radon volumetric activity, in particular, the tracking method using the TRACK-REI-1M instrument set as an example, to conduct radiation-ecological surveys of children's educational institutions.

Keywords: background gamma radiation, isotopes of radon, radiometers, integral methods, track method, fading effect

ФГУП «РАДОН» и радиационный контроль образовательных учреждений города Москвы

Одним из основных направлений работы ФГУП «РАДОН» является радиационно-экологический мониторинг объектов и территорий города Москвы. В числе обследуемых объектов значимое место всегда занимают объекты, подведомственные департаменту образования города Москвы — это детские сады, школы и другие детские образовательные учреждения.

Традиционно радиационное обследование внутри помещения детского учреждения подразумевает гамма-съёмку ограждающих конструкций (стен), измерение фонового гамма-излучения (измерение мощности эквивалентной дозы гамма-излучения в центре помещения) и контроль воздуха в помещении на предмет изотопов радона и их дочерних продуктов распада (измерение эквивалентно-равновесной активности (ЭРОА) изотопов радона в воздухе обследуемого помещения) [2, 6]. В процессе типового планового обследования детского учреждения обычно используются переносные радиометры радона, принцип действия которых сводится к снятию спектра излучения альфа-частиц с бумажного аналитического фильтра, на который предварительно производится отбор пробы воздуха путём прокачки с помощью встроенного в прибор воздушного насоса. Оценка ЭРОА радона в таком приборе осуществляется измерением активности дочерних продуктов распада радона: ^{218}Po (RaA) и ^{214}Po (RaC), осаждаемых на аналитический фильтр в процессе прокачки через него воздуха. Затем по измеренному значению ЭРОА радона производится расчёт условного среднегодового значения ЭРОА радона, с учётом погрешности прибора и коэффициента вариативности (условного), по принципу «лучше перестраховаться, чем рисковать».

При гамма-съёмке и измерениям радиационного фона в детских учреждениях города Москвы превышений практически никогда не обнаруживается, за исключением редких единичных случаев. Иногда при исследовании радонового фона в помещениях наблюдается превышение расчётного среднегодового значения ЭРОА изотопов радона установленной нормы в 200 Бк/м^3 [2].

Целесообразность применения интегральных методов

Дело в том, что мгновенные измерения в принципе не могут дать полностью объективной оценки среднегодового значения исследуемой величины, в частности ЭРОА изотопов радона, поскольку мгновенные значения концентрации радона в воздухе непостоянны и сильно зависят от проветривания помещений [6]. Измерения средней длительности или квазиинтегральные дают более объективную оценку [3-5]. Наиболее распространённый вариант — пробоотборные камеры с активированным углём — сорбентом радона, а также длительные или интегральные измерения.

Длительность интегральных измерений обычно составляет 1-2 месяца, при необходимости, интегральные измерения могут проводиться непрерывно, в течение всего года или дольше, сколько требуется, при этом производится смена пробоотборных камер каждые 2-3 месяца. В случае круглогодичного обследования, среднее арифметическое полученных данных фактически соответствует среднегодовому значению.

Хотя такие методы имеют более высокую погрешность измерений по сравнению с мгновенными спектрометрическими измерениями (40%-50% против 30%), их использование более точно, по сравнению с мгновенными измерениями. При расчётах среднегодового значения ЭРОА изотопов радона, полученное прибором мгновенное значение суммируется с погрешностью измерения прибора — 30% и умножается на коэффициент вариативности, условно принятый равным 1,3 (несколькими годами ранее 3). Таким образом, фактическая погрешность оценки среднегодового значения ЭРОА радона на основе мгновенных разовых измерений, с учётом коэффициента вариативности, составляет почти 70%.

Особенности обследования трековым методом

Наиболее распространённым методом интегрального измерения объёмной активности радона в воздухе помещений является трековый метод. Принцип метода основан на том, что альфа-частицы, образующиеся при распаде радона, при соударении со специальным чувствительным веществом образуют микрповреждения — треки частиц, которые потом можно анализировать [3-5].

Примером такого чувствительного к альфа-частицам вещества может служить специальная нитроцеллюлозная плёнка. Эта плёнка натягивается на специальные пальцы, которые затем вставляются в корпус экспозиметра.



Рис.1 Схема радионового экспозиметра РЭИ-4

Заряженные экспозиметры, которых также иногда называют пробоотборными камерами с трековым детектором (ПКТД), устанавливают в обследуемых помещениях, подвешивая на осветительные приборы или другие высоко расположенные предметы, дабы исключить доступ к ним детей. При соударении с поверхностью плёнки альфа-частицы оставляют на ней микроповреждения. Сами по себе эти микроповреждения абсолютно незаметны и практически не поддаются обнаружению, но после специальной обработки (физической и/или химической) они сильно увеличиваются в размерах и легко поддаются счёту и анализу различными методами. Обработка нитроцеллюлозной плёнки — трекового детектора — в некотором отношении подобна проявлению фотоплёнки — она проявляет невидимые ранее полученные результаты и закрепляет результаты, полученные к моменту обработки, то есть после обработки плёнки дальнейшее воздействие на неё альфа-частиц уже не влияет на полученные результаты. Химическая обработка плёнки заключается, например, в травлении концентрированным раствором щёлочи, а физическая — в электрическом высоковольтном искровом пробое. После обработки производится счёт треков. На данный момент, счёт треков производится методом искрового пробоя, при помощи счётчика «Аист-4». Принцип действия основан на том, что плёнка — трековый детектор служит как бы диэлектриком между обкладками конденсатора, а самими обкладками выступают с одной стороны твёрдый металлический электрод, а с другой стороны — металлизированная плёнка. В местах, где имеются повреждения от треков, дополнительно разведенные раствором концентрированной щёлочи, происходит искровой электрический пробой. При этом на металлизированной плёнке происходит выгорание нанесённого слоя металла, и повторный искровой пробой в этом же месте невозможен. После травления в щёлочи и тщательной просушки пьезоэлементы с плёнкой устанавливают в прибор, где сначала несколько раз проводят операцию «пробоя», чтобы явственнее пробить отверстия в плёнке, а затем несколько раз проводят операцию «счёта», для непосредственного счёта пробитых отверстий. Режимы «пробоя» и «счёта» отличаются напряжением, подаваемому на электроды — в режиме пробоя оно, как правило, примерно в полтора раза выше, чем в режиме счёта.

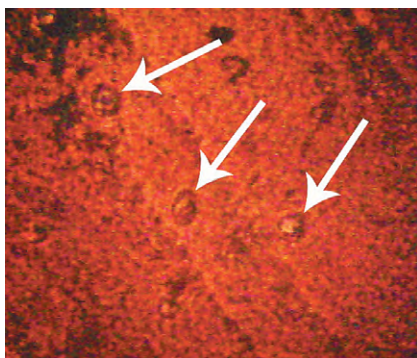


Рис. 2.

Микрофотография плёнки после травления в щёлочи. Стрелочками показаны лунки, образовавшиеся в результате разведения щёлочью микроповреждений на плёнке от альфа-частиц.

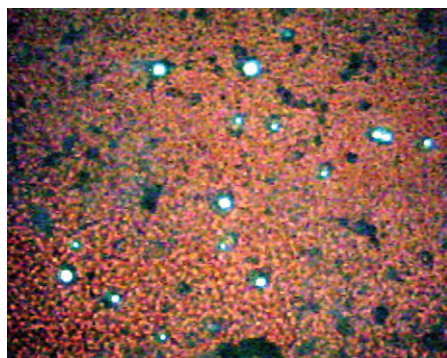


Рис. 3.

Микрофотография плёнки после химического травления и последующего электрического пробоя. Хорошо заметны сквозные отверстия.

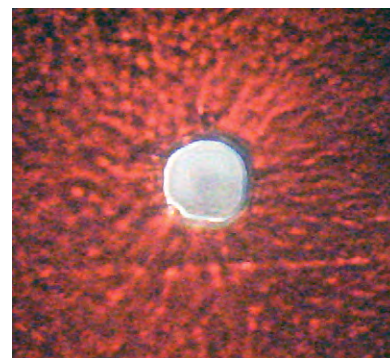


Рис. 4.

Микрофотография сквозного отверстия крупным планом.

Исходя из данных о количестве отверстий, рассчитывают объёмную активность (ОА) радона, с учётом чувствительности трекового детектора и времени экспозиции. А на основании данных об ОА радона, полученных интегральным методом, и данных об ЭРОА торона (^{220}Rn), полученных мгновенными измерениями, рассчитывается общая ЭРОА изотопов радона, на основании которой делаются выводы о соответствии или не соответствии помещения санитарным нормам. Мгновенные измерения торона проводятся, как правило, два раза: в процессе установки и в процессе снятия ПКТД. Дело в том, что используемый интегральный метод в том виде, в каком он сейчас есть, пригоден лишь для определения изотопа радона ^{222}Rn , а торон (^{220}Rn), вследствие своего короткого (относительно ^{222}Rn) периода полураспада, просто не успевает просочиться сквозь узкую щель корпуса экспозиметра в достаточном количестве. Воздухообмен между внешней средой и полостью радонового экспозиметра весьма пассивен, в результате этого также внутрь не попадают дочерние продукты распада радона, а воздух внутри экспозиметра стабилизирован, например, от резких изменений влажности, температуры, и т. п.

Для более объективной оценки ОА радона, обследование трековым методом проводят два раза в год: в тёплый и холодный периоды [1]. Особо проблемные объекты обследуются круглогодично. При круглогодичном обследовании установленные ПКТД заменяются каждые 2-3 месяца, ибо рекомендуемый срок экспозиции — не более трёх месяцев, в противном случае, может иметь место эффект фединга — затягивания со временем микроповреждений от альфа частиц. Круглогодичное обследование интересно тем, что позволяет снизить до нуля все факторы вариативности (непостоянства ОА радона со временем) и поправки на них при расчётах.

Нововведения

При проведении обследований трековым методом, значительную часть времени занимают обработка и счёт трековых детекторов.

В связи с этим встал вопрос о разработке программного обеспечения (ПО), ориентированного на конкретные поставленные задачи: прежде всего — автоматизация процедур пробоя и счёта треков (как в штатном ПО), с дальнейшим выводом таблицы первичных данных для дальнейшей обработки в программах работы с электронными таблицами. На основе полученных данных, было с нуля написано новое ПО для работы со счётчиком треков. Для разработки этого ПО использовалась свободная среда разработки Lazarus.

Первая, пилотная версия нашего ПО могла представлять табличные данные только по счёту треков, в последующей версии была добавлена возможность расчёта ОА и ЭРОА радона в реальном времени.



Рис.5. Скриншот программы для счётчика треков

Процедуры пробоя и счёта треков были автоматизированы, теперь стало нужно лишь разложить палочки с плёнкой в порядке протокола радиационного обследования, а оператору в процессе пробоя и счёта нужно лишь менять палочки в каретке счётчика после завершения цикла измерений и нажимать на кнопку после установки следующих палочек, для запуска нового цикла обработки и измерений.

Другим недостатком данного метода являлся значительный статистический разброс результатов.

Для того, чтобы как-то снизить этот фактор, был проведён ряд исследований. Главным образом исследовалось влияние плотности закрытия крышки экспозиметра и влияние времени экспозиции на статистический разброс получаемых результатов и на чувствительность плёнки.

В ходе исследований, серии ПКТД экспонировались в течение различных сроков. При этом одни ПКТД были закрыты очень плотно, другие не очень, у третьих был специально оставлен небольшой зазор между корпусом и крышкой. Также экспонировались палочки вообще без корпуса.

Экспонирование проводилось в радоновой камере отдела метрологического обеспечения производства ФГУП «РАДОН» при содействии В.С. Василищского, а также в специально разработанной для данного эксперимента камере — макете естественной радоновой активности, с использованием в качестве источника радона проб естественных природных минералов с относительно высоким содержанием урановой руды (согласно данным гамма-спектрометрии проб грунта). Ключевой особенностью такого макета естественной радоновой активности является выделение чистого радона без торона (согласно данным альфа-спектрометрии). Камера была создана при содействии И.И. Ковалёва с кафедры радиобиологии МГВМиБ, в плане предоставления проб грунта и гамма-спектрометрических данных по ним.

В результате данной серии экспериментов было установлено, что наименьший статистический разброс наблюдается у не очень плотно закрытых ПКТД. Также по полученным на данный момент данным было установлено, что при коротких сроках экспозиции следует учитывать латентный период до наступления равновесия между воздухом внутри корпуса ПКТД и внешней средой.

В перспективах использования интегральных средств измерений имеется предложение возможного использования в будущем автоматизированного оптического исследования экспонированного и обработанного трекового детектора (автор идеи — А.Н. Ильинов). Главной целью такого проекта является возможность различать треки, оставленные альфа частицами с разной энергией, и соответственно, потенциальная возможность раздельного определения радона и торона интегральным методом.

Список литературы

1. МУ 2.6.1.037-2015 *Определение среднегодовых значений ЭРОА изотопов радона в воздухе помещений по результатам измерений разной длительности* - М.: ФМБА России, 2016 г
2. МУ 2.6.1.2838-11 *Радиационный контроль и санитарно-эпидемиологическая оценка жилых, общественных и производственных зданий и сооружений после окончания их строительства, капитального ремонта, реконструкции по показателям радиационной безопасности* – М.: Федеральный центр гигиены и эпидемиологии Роспотребнадзора, 2011 г.
3. МИ-197-19 *Методика измерений объемной активности радона трековым методом* - М.: ФГУП «Радон», 2019 г.
4. МВИ 2.6.1.003-99 *Радон. Измерение объемной активности интегральным методом в производственных, жилых и общественных помещениях* – М.: Министерство РФ по атомной энергии, ФУ «Медбиоэкстрем», 1999 г.
5. МИ № 40090.2И385 *Радон. Измерение объемной активности в воздухе помещений интегральным трековым методом* – М.: ФГУП НТЦ радиационно-химической безопасности и гигиены ФМБА России, 2012 г.
6. А.И. Журавлёв, *Биофизическая и радиационная экология* — М.: ФГОУ ВПО МГВМиБ имени К.И. Скрябина, 2012 г.

УДК 57734.613.5

Техногенное радиоактивное загрязнение территории города Москвы

Охрименко С.Е., Алехнович А.В.,
Акопова Н.А., Ермолина Е.П., Перцов В. А.,
Дружинина Ю.В., Ванина Е.А.

РМАНПО

e-mail: vmnauka@mail.ru

Проанализированы результаты работ по выявлению и ликвидации участков радиоактивного загрязнения на территории города Москвы. Локальное радиоактивное загрязнение территории города является особенностью Москвы. Это было обусловлено существенным отставанием развития системной инфраструктуры утилизации радиоактивных отходов и системы регулирования при обращении с техногенными радионуклидами. Разработаны критерии оценки потенциальной радиационной опасности территорий административных районов города Москвы.

Ключевые слова: участок радиоактивного загрязнения, мощность дозы гамма-излучения, дезактивационные работы, радиационный контроль.

Technogenic radioactive contamination of the territory of the city of Moscow

Okhrimenko S.E., Alekhnovich A.V.,
Akopova N.A., Ermolina E.P., Percov V.A.,
Druzhinina Y.V., Vanina E.A.

FSBEI FPE

e-mail: vmnauka@mail.ru

The results of the work on the identification and elimination of sites of radioactive contamination in the city of Moscow are analyzed. Local radioactive contamination of the city is a feature of Moscow. This was due to the significant lag in the development of the system infrastructure for radioactive waste disposal and the control system for the treatment of man-made radionuclides. The criteria for assessing the potential radiation hazard of the administrative districts of Moscow have been developed.

Keywords: the site of radioactive contamination, dose rate of gamma radiation, decontamination, radiation control

Актуальность

Проблема оценки радиационной безопасности селитебных территорий в результате техногенного радиоактивного загрязнения, а также дозовых нагрузок и вреда здоровью человека является одной из приоритетных с социальной, экономической и медицинской точек зрения. Помимо глобальных радиационных аварий (Три-Май-Айленд, ЧАЭС, Фукусима-1) важную роль в аварийном облучении населения принадлежит локальным радиационным авариям (РА) и обусловленное ими радиоактивное загрязнение территории. Несмотря на свою «локальность», данные аварии часто влекут тяжёлые последствия, в т. ч. лучевое поражение людей. Локальные аварии затрагивают любые территории, среды и виды деятельности человека, включая медицину [1, 2, 3, 4, 5]. Большое влияние на развитие локальных РА имеет состояние системы контроля и учёта ИИИ [6]. Для территории г. Москва характерно массивное локальное радиоактивное загрязнение, возникшее в период 40-60-х гг. XX в., связанное с широким распространением радионуклидных технологий, приборов и материалов со светомассой постоянного действия, деятельностью других радиационно-опасных объектов [7, 8].

В конце 70-х и начале 80-х годов выборочными инструментальными исследованиями было показано, что территория города Москвы подвержена техногенному радиоактивному загрязнению. Осознание опасности данной ситуации привело к принятию исполнительной властью Москвы ключевых решений, направленных на ликвидацию указанной проблемы – множественного локального радиоактивного загрязнения. Локальное радиоактивное загрязнение тогда было выявлено практически на всей территории города и представлено участками радиоактивного загрязнения (УРЗ), сформированными радиоактивно-загрязнёнными материалами (промышленные отходы, загрязнённый грунт) и отдельными источниками ионизирующих излучений (ИИИ). Характерные примеры загрязнения приведены ниже.

УРЗ большой площади: территория жилого квартала в районе улиц Новаторов – Обручева и Ленинского проспекта, площадь участка – 0,7 км², загрязняющий нуклид – ¹³⁷Cs, МЭДГИ 2 – 20 мГр/ч; парк имени XXII съезда КПСС, площадь участка – 1 км², около 100 отдельных очагов, МЭДГИ – до 0,3 Гр/ч; пустырь на пересечении ул. Гамалеи – ул. Максимова, загрязнённый грунт и пластик, МЭДГИ - 150 мГр/ч; разворотный круг трамвая у метро «Шукинская», МЭДГИ – 6 мкЗв/ч, загрязнение сформировано изотопами ¹³⁷Cs, ¹⁵¹Eu, ²⁴¹Am, ²³⁹⁻²⁴¹Pu, активность изотопов Pu – до 70000 Бк/кг. Типичными для территорий Южного, Юго-Западного и Юго-Восточного АО являются такие участки как: 26-й км МКАД, территория АЗЛК, ул. Гарibaldi, 38-й квартал по Мичуринскому проспекту, где выявлены площадные участки (несколько га), с глубиной залегания загрязнения до 40 м. Свалка, загрязнённая изотопами ураноториевого ряда, выявлена при отводе земельного участка под строительство микрорайона Братеево, где удалено десятки тысяч тонн загрязнённого грунта. До настоящего времени сохраняется зона радиоактивного загрязнения на склоне берега р. Москвы по Каширскому шоссе за территорией ряда режимных учреждений (МИФИ - ВНИИХТ – ВНИИМ – «Завод полиметаллов» – ж/д мост Курского направления). В частности, за территорией «Завод полиметаллов» выявлено загрязнение берегового склона торием-232 (²³²Th) площадью до 5 га, с предполагаемым объёмом загрязнённого грунта 60000 – 100000 тонн.

Имели место факты радиоактивного загрязнения, непосредственно, социальных объектов: Юго-Западный округ, загрязнение территория детского сада № 1316 (24 очага), МЭДГИ на поверхности – 2,5 мкГр/ч, на глубине 0,5 м – до 16 мкГр/ч; Северо-Западный округ, ул. Рогова, 10, детский сад №1, – на площади 600 м², МЭДГИ до 0,6 Гр/ч на поверхности грунта.

Большую потенциальную опасность для жизни и здоровья населения представляли утерянные особо мощные гамма-излучающие источники (ОМИИИ): в кювете Алтуфьевского шоссе – 1,5 Гр/ч (⁶⁰Co); ЦПКО им. Горького, под клумбой у кафе «Золотая осень» – 0,8 Гр/ч (⁶⁰Co); территория склада имущества частей Гражданской обороны (2 Гр/ч); куча мусора у метро «Бауманская» – 0,02 Гр/ч (⁶⁰Co); территория НИИ «Физическая химия», ампула – 25 мГр/ч (¹³⁷Cs); сквер у кинотеатра «Россия» («Пушкинский»), металлическая проволока – 50 мГр/ч (⁶⁰Co); у павильона «Метро 1905 года», проволока – 80 мГр/ч (⁶⁰Co).

Бывший противотанковый ров в районе «Поклонной горы» – одно из известных мест мощного радиоактивного загрязнения, связанного с деятельностью авиационных предприятий и утилизацией приборов с так называемой «светомассой постоянного действия» (СПД) на основе солей радия – 226 (²²⁶Ra), где МЭДГИ при дезактивации составляла до 0,02 Гр/ч.

Неоднократно имели место случаи выявления предметов с СПД в музейных экспозициях, личных предметах граждан, на предприятиях и в учреждениях в виде различных приборов (шкалы, компасы, часы военного образца, контрольно-измерительные приборы, тумблеры, предметы неизвестного назначения и т. д.), отдельных художественных произведениях (картины, шкатулки), а также в виде ампул, содержащих светосостав. Во многих случаях это приводило к серьёзному радиоактивному загрязнению (α -загрязнение) производственных объектов, помещений, объектов окружающей среды и людей.

Поверхностное α -загрязнение выявлено на ряде предприятий авиационной промышленности. Так, радиоактивное загрязнение площадью более 3000 м², вызванное осыпанием светосостава с устаревших тумблеров, обнаружено в цехах АНТК им. Туполева, в учебных помещениях трёх авиационных техникумов, в учебных лабораториях МВТУ им. Баумана, МИСИ, заводов «Универсал», «Союз» (от нескольких до десятков и сотен 5 - частиц/см²·мин). Радиовая игла с МЭДГИ 20 мГр/ч обнаружена в жилой квартире дома № 1 по ул. Генерала Глаголева. Ампулы с СПД неоднократно выявлялись при обследовании квартир (квартира в г. Зеленограде, ампула – 160 мкЗв/ч). Загрязнение ¹³⁷Cs в жилом фонде: ул. Северодвинская, д.11 – радиоактивное загрязнение квартиры и двух подъездов, мусоропровода и прилегающей территории. Радиовое загрязнение конца XX начала XXI века обнаружено на 2-ом этаже Клиники кожных болезней 1-го ММИ им. И. М. Сеченова. Уровни поверхностного α -загрязнения составили 5 - 70 частиц/см²·мин.

Но, если наличие техногенных ИИИ на предприятиях так или иначе в конечном итоге подпадало под процедуру регулирования (в 1958 г. создан отдел радиационной гигиены в МосГорСЭС, 1961 г. – создан ПЗРО «Радон»), то использование СПД носило самое широкое, массовое и не регламентируемое применение, практически до середины 70-х годов и внесло очень большой вклад в формирование локальных УРЗ на территории Москвы.

«Взрывное» распространение ИИИ могло приводить к повышению дозовых нагрузок как персонала, так и населения, что в условиях Москвы было обусловлено существенным отставанием системы радиационного контроля (РК), инфраструктуры обеспечения радиационной безопасности (РБ) от развития самих радиационных технологий, что в сочетании с отсутствием в этот период системы надзора за РБ и соответствующих подготовленных кадров приводила к негативным последствиям. Существенное негативное влияние на характер воздействия ИИИ на население оказывают особенности Москвы как мегаполиса, к которым можно отнести: ограниченность территории, высокую концентрацию населения, большое количество и разнообразие промышленно-производственных объектов, учреждений, применяющих широкий спектр радиационных источников и технологий, наличие радиационно-опасных объектов, объектов городской инфраструктуры, большие транспортные потоки.

Районы наиболее часто выявляемых УРЗ и масштабных дезактивационных работ были выделены в зоны особого риска:

Северо-Западный округ: район станций метро «Шукинская», «Октябрьское поле», «Полежаевская»; улица Берзарина, Паршина, Живописная, Генерала Карбышева, Генерала Глаголева, Проспект Маршала Жукова, Карамышевская набережная; микрорайоны: Дьяково городище, Троице-Лыково, Строгино;

Южный округ: Москворечье, парк «Коломенское», территория берега р. Москвы вдоль Каширского шоссе в зоне расположения режимных учреждений (МИФИ, ВНИИХТ, ВНИИМ, «Завод полиметаллов»), Нагатинский затон;

Юго-Западный округ: районы метро «Профсоюзная», «Калужская», улицы Профсоюзная, Вавилова, Новаторов, Островитянова, Намёткина; микрорайоны «Новые Черёмушки», «Никулино»;

Западный округ: район «Поклонной горы», пойма реки «Сетунь», м/р «Раменки».

В связи с отсутствием до 1961 г. системы сбора и утилизации радиоактивных отходов (РАО), предприятия, расположенные на территории города Москвы, самостоятельно решали проблему их захоронения путём создания временных могильников на собственной территории, а также удаления РАО на территорию стихийных неорганизованных свалок.

Масштабы возможного экологического ущерба можно косвенно оценить по данным МосНПО «Радон». Так, к 1995 году 724 организации имели договор с МосНПО «Радон» на вывоз РАО. Ежегодно обращалось в «Радон» 100 – 120 предприятий, с которых вывозилось более 40 тонн твёрдых РАО активностью около 10¹³ Бк и до 2000 отдельных ИИИ суммарной активностью около 5 × 10¹⁵ Бк. При этом, неучтённые или утраченные источники попадали в окружающую среду. Данные обстоятельства определяют актуальность научных исследований по постоянному контролю и мониторингу техногенного радиоактивного загрязнения города Москвы.

Материалы и методы

В работе проведён анализ результатов дезактивационных работ, проводившихся в рамках городских мероприятий по выявлению и ликвидации участков локального радиоактивного загрязнения (УРЗ). Проведён анализ протоколов Центров ГСЭН в г. Москве и административных округов при проведении радиационного контроля УРЗ, специализированных организаций «Геоэкоцентр» и МосНПО «Радон», «Мосгоргеотреста», на основании которых формировались санитарно-эпидемиологические заключения о возможности дальнейшего использования территорий, подвергшихся техногенному радиоактивному загрязнению.

Обсуждение результатов

Масштабные работы по дезактивации проводят по решению Мосгорисполкома г. Москвы с 1984 г. Однако в конце 90-х уровень организации работ заметно снижается, что послужило основанием для разработки новых основополагающих документов определивших характер работ на территории города после 1995 г. [9]. В ходе проведения активного поиска выявлено и ликвидировано более 1000 УРЗ [10] (таблица 1).

Таблица 1

Количество и характеристика УРЗ, выявленных за период 1971 – 2013 гг.

Округ	Количество УРЗ	Диапазон МЭДГИ (мкЗв/ч)			* $K_{V_{100}}$	РАО (т)
		1,8	—	250 000		
Ю – З	167	1,8	—	250 000	3,2	46
Ю – В	170	0,4	—	20 000	3,5	17
Ю	167	1,5	—	7 200	0,8	125
В	139	1,5	—	1470 000	2,4	4,5
Ц	132	2,0	—	800 000	8,7	40
С-В	117	0,6	—	1500 000	4,9	5
З	110	1,0	—	2000 000	8,3	35
С-З	93	0,45	—	25 000	2,9	120
С	47	0,6	—	20 000	2,9	35
Зел.	6	4,0	—	360	0	0,02
Итого	1142					428

* – частота выявления особо мощных γ -излучающих ИИИ (ОМИИИ γ) на 100 УРЗ

По мере проведения дезактивационных работ уменьшалась как частота выявления УРЗ, так и уровни радиоактивного загрязнения. Так, за период 2001 – 2012 годов выявлено только 135 УРЗ средней и низкой активности, а ОМИИИ γ за этот период не выявлялись. Радионуклидный состав УРЗ приведен в таблице 2.

Таблица 2

Радионуклидный состав УРЗ

Радионуклид	^{226}Ra	$^{95}\text{Nb}/^{95}\text{Zr}$	^{137}Cs	^{60}Co	^{232}Th	^{239}Pu
%	58,79	14,66	14,51	5,30	3,81	2,93

Как следует из представленных данных, наибольшее количество УРЗ связано с ^{226}Ra . На втором месте находятся $^{95}\text{Nb}/^{95}\text{Zr}$ и ^{137}Cs и с учётом изотопов ^{60}Co и ^{239}Pu доля УРЗ, обусловленных промышленными техногенными ИИИ, составляет 37,4%.

Радионуклидный состав, нефиксированный характер радиоактивного загрязнения, уровни внешнего γ -излучения на УРЗ позволяют полагать, что отдельные группы населения в 40-х - 60-х годах XX в. подвергались дополнительному облучению техногенными ИИИ. Облучение могло происходить в период несанкционированного движения аварийных ИИИ и радиоактивно-загрязнённых материалов и формированию локальных УРЗ. По нашему мнению, это могло приводить к увеличению средней индивидуальной эффективной дозы облучения населения Москвы, обусловленной природным радиационным фоном и глобальными выпадениями РВ в результате испытаний ядерного оружия, в пределах от 1 до 10 мЗв/год.

Вряде случаев имела место возможность возникновения детерминированных эффектов (острая, хроническая лучевая болезнь, местные лучевые поражения).

Анализ уровней МЭДГИ по 942 УРЗ по округам Москвы представлен в таблице 3.

Уровни МЭДГИ на УРЗ по АО Москвы

МЭДГИ мкЗв/ч	Количество УРЗ по АО Москвы									
	Ц	С	СВ	В	ЮВ	Ю	ЮЗ	З	СЗ	
< 10	31	14	56	63	56	56	59	23	20	377
10-100	46	10	25	34	50	47	58	29	26	321
100-500	16	4	8	12	14	9	17	17	9	105
500-1000	7	3	4	7	6	5	9	5	3	49
1000-5000	5	1	4	3	11	6	10	4	3	47
5000-10000	0	1	0	1	2	1	1	0	4	10
> 0,01 Зв/ч*	10	1	5	3	5	1	5	7	2	39
ВСЕГО	115	34	102	123	144	125	154	84	67	942

* - ОМИИИγ

Анализ данных по уровням МЭДГИ показывает, что 26% УРЗ характеризуется высокими уровнями внешнего γ-излучения > 100 мкЗв/ч.

Потенциальная радиационная опасность отдельных административных округов города Москва оценивалась по следующим показателям: частоте выявляемости УРЗ, объёму РАО, частоте выявления ОМИИИγ. Наиболее часто УРЗ выявлялись в ЮВАО, ЮЗАО, ЮАО, на втором месте ЦАО, ВАО и на третьем месте находятся СВАО, ЗАО, СЗАО и САО.

Наибольшее количество РАО вывезено с территории ЮАО и СЗАО округов. Значительное количество РАО (35 – 46 т) вывезено с территории ЮЗАО, ЦАО, ЗАО и САО округов. Низкое количество РАО отмечено в ЮВАО, ВАО и СВАО.

Рассматриваемые показатели не позволяют сделать вывод о степени радиационной опасности УРЗ для населения. Для такой оценки необходим интегральный показатель радиационной опасности, учитывающий все необходимые признаки.

С этой целью предложен комплексный показатель потенциального дополнительного риска облучения:

$$R = \frac{N \times V \times K_{\gamma} 100}{1000}, \text{ где}$$

R – показатель потенциального дополнительного риска облучения;

N – количество (частота) выявленных радиационных аномалий;

V – объём удаляемых РАО (т);

K_γ – частота выявления особо мощных γ-излучающих источников (ОМИИИγ) на 100 УРЗ;

1000 – безразмерный множитель.

Ранжирование административных округов Москвы по показателю R представлено в таблице 4.

Таблица 4

Ранжирование округов Москвы по показателю R

Административный округ города Москвы	R
Юго – Западный	16,4
Юго – Восточный	6,7
Южный	11,1
Восточный	1
Центральный	30,6
Северо-Восточный	1,9
Западный	23,6
Северо-Западный	23,3
Северный	3,2

Анализируя показатели частоты выявления УРЗ, ОМИИИу и объёмов, удалённых РАО по административным округам, удалось выявить наиболее и наименее радиационно-опасные территории Москвы. Эта оценка указывает степень потенциальной радиационной опасности облучения населения на административных территориях, которую можно разделить на 3 категории по показателю «R»: низкая – до 5, средняя – до 20 и высокая > 20. Как видно, САО, СВАО и ВАО г. Москвы относятся к категории низкой радиационной опасности, ЮАО, ЮВАО – средней и ЮЗАО, ЗАО, СЗАО и ЦАО – к высокой. Можно отметить, что уровень данного фактора в ЦАО исключительно высок. В этой связи можно предположить, что основным источником облучения населения города Москвы за счёт техногенных ИИИ являлись местные аварийные ситуации, обусловленные утерянными ИИИ и радиоактивно-загрязнёнными материалами в период их циркуляции и формирования локальных УРЗ, а также возможность повторного дополнительного облучения при возникновении ситуации рециркуляции указанных ИИИ и радиоактивно-загрязнённых материалов.

При ранжировании АО Москвы по критерию R мы косвенно учитываем и внутреннее облучение населения за счёт обращения так называемых «особо низкоактивных отходов» (ОНАО). Это отходы, представленные чаще всего радиоактивно-загрязнённым грунтом, но по своим характеристикам, не относящимся к собственно РАО. Было принято, что к ним относятся грунт и материалы с МЭДГИ < 3 мкЗв/ч и удельной активностью по ^{137}Cs и ^{226}Ra < 10000 Бк/кг.

Такие отходы удалялись обычными средствами на полигоны промышленных и бытовых отходов. Их объём учесть крайне сложно, но в целом он превосходил объём истинных РАО на несколько порядков. Так, при дезактивации стройплощадки м/р «Братеево» удалено несколько тонн РАО и несколько десятков тысяч тонн ОНАО. При дезактивации площадки под строительство новых корпусов АЗЛК в 1984 г. («сучье болото») удалено около 2000000 м³ таких отходов. На территории ЮАО по берегу р. Москвы в районе «Завода полиметаллов» объём тарированных радиоактивно-загрязнённых грунтов/материалов (РЗГМ) в отвале оценивается от 60000 – 100000 тонн, а с учётом радиоактивного загрязнения всей зоны (от МИФИ до «Завода полиметаллов») может составить и до 10⁶ тонн. В целом, объём обращавшихся ОНАО на территории Москвы, может быть оценён как не менее 5 × 10⁶ т, но, вероятнее, находится в пределах в пределах 5 × 10⁶ - 10 × 10⁶ тонн. В это число не входит значительная активность ^{226}Ra , изъятая с различными приборами, шкалами, музейными экспонатами и т. д., представлявшими собой массовый источник поступления α-излучателей в окружающую среду и организм человека.

Заключение

Причинами масштабного радиоактивного загрязнения территории Москвы в историческом контексте является разрыв между практикой применения и инфраструктурой обеспечения радиационной безопасности, системой нормативно-правового регулирования обращения с ИИИ, что определяет проблему множественного локального загрязнения мегаполиса.

Формальное «регулирование» деятельности с техногенными источниками ионизирующих излучений не может обеспечить безопасность их обращения, поскольку в таком случае контроль сводится исключительно к соблюдению бюрократических процедур. В настоящее время, когда процедура надзора представлена дискретными проверочными и экспертными мероприятиями, проводимыми по отношению юридических лиц в ограниченные временные рамки (не более 20 рабочих дней), вновь создаются условия для утраты опасных источников и их дальнейшей циркуляции в окружающей среде.

Список литературы

1. Соловьев В.Ю. Анализ медицинских последствий радиационных инцидентов на территории бывшего СССР (по материалам регистра ФГБУ ГНЦ ФМБЦ им. А.И. Бурназяна ФМБА России) / В.Ю. Соловьев, А.В. Барабанова, А.Ю. Бушманов, А.К. Гуськова, Л.А. Ильин // *Медицинская радиология и радиационная безопасность.* - 2013. - Т. 58. - № 1. - С. 36-42.
2. Коренков И.П. Защита окружающей среды при эксплуатации и выводе из эксплуатации радиационно-опасных объектов / И.П. Коренков, Н.К. Шандала, Т.Н. Лащёнова, А.И. Соболев // *БИКОМ.* - 2014. - С. 79-91.
3. Дмитриев С.А. Радиационная обстановка в Московском регионе (1957 - 2005 гг.) / С.А. Дмитриев, Л.А. Ильин, И.П. Коренков // *М.: Атомная энергия.* 2006. - Т.100. - Вып. 3. - С. 236 – 243.
4. Романович И.К. Гигиеническая характеристика радиационной обстановки на акватории Ладожского озера при подъёме радиационно-загрязнённого опытового судна «Кит» / И.К. Романович // *Радиационная гигиена.* – 2016. - №3. – С. 6 – 11.
5. Гусев А.В. Критерий оценки риска аварийной ситуации при обращении закрытых источников ионизирующего излучения / А.Е. Гусев, А.А. Козлов, К.Н. Лавров, П.И. Рудаков, И.А. Соболев // *Атомная энергия.* -2000. - Т. 8. - ВЫП. 6. - С.- 453 - 458.
6. Охрименко С.Е. Некоторые вопросы регулирования обращения с радиоактивными источниками в современных условиях / С.Е. Охрименко // *АНРИ.* - 2013. – №2. – С. 22 – 28.
7. Охрименко С. Е. Гигиеническая оценка загрязнения территории г. Москвы радиоактивными веществами техногенного происхождения / С. Е. Охрименко, И. П. Коренков, Н. А. Аكوпова, С. И. Иванов // *АНРИ.* – 2016.- №3. – С. 64-71.
8. Постановление Правительства Москвы от 20.06.1995 г. № 553 «О порядке выявления, учёта и использования участков территорий, подвергшихся техногенному радиоактивному загрязнению и обеспечении радиационной безопасности при проведении строительных и других земляных работ на территории г. Москвы»
9. Охрименко С.Е. Научное обоснование обеспечения радиационной безопасности населения города Москвы при воздействии природных и техногенных источников ионизирующих излучений. Диссертация на соискание учёной степени кандидата медицинских наук: 14.02.01 – Гигиена. - Москва. – 2017. – с.172.

УДК 621.039.76

Исследование миграции радионуклидов во вмещающих породах хранилищ РАО и водных экосистемах санитарно-защитной зоны

Лебедева О.М.

ФГУП «РАДОН»

e-mail:OMLebedeva@radon.ru

При решении задач, связанных с оценкой безопасности приповерхностных хранилищ РАО, оцениваемый объект рассматривается как единая взаимосвязанная система, включающая: источник возможного загрязнения - зацементированные РАО, контейнеры и другие применяемые упаковки, инженерные барьеры хранилищ РАО, вмещающие породы и водные экосистемы санитарно-защитной зоны.

Ключевые слова: оценка безопасности, инженерные барьеры, горизонтальная миграция, механизм переноса радионуклидов

Investigation of radionuclides migration in surrounding rocks of RAW repositories and in water ecosystems of sanitary zone

Lebedeva O.M.

RADON FSUE

e-mail:OMLebedeva@radon.ru

When solving the tasks connected with the assessment of safety of near-surface repositories of RAW, the assessed object is considered as a single interconnected system consisting of: a source of possible contamination – cemented RAW, containers and other applicable packages, engineer barriers of RAW repositories, surrounding rocks and water ecosystems of sanitary-protected zone.

Keywords: safety evaluation, engineering barriers, horizontal migration, transfer mechanism of radionuclides

При решении задач, связанных с оценкой безопасности приповерхностных хранилищ РАО, оцениваемый объект рассматривается как единая взаимосвязанная система, включающая:

- источник возможного загрязнения – упаковка РАО, включая матрицу отходов, контейнер и другие элементы упаковки, изъятый из употребления закрытый радионуклидный источник, а также инженерные барьеры хранилища, включая строительные конструкции, буферные материалы, запечатывающие элементы, верхнее покрытие и подстилающий экран;
- ближнюю зону ХТО – часть вмещающих или подстилающих естественных пород, непосредственно контактирующая с сооружениями, процессы в которой могут быть взаимосвязаны с процессами, протекающими в инженерной части хранилища, то есть та часть, которая может оказывать воздействие на источник возможного загрязнения, либо подвергаться его воздействию;
- дальнюю зону ХТО – часть вмещающих естественных пород, контактирующая с ближней зоной ХТО и с биосферой, состояние и характеристики которой влияют на миграцию радиоактивных веществ от границы ближней зоны к границе биосферы и изменение состояния которой в связи с любыми возможными процессами и событиями как природного, так и техногенного происхождения может привести к изменению этих характеристик;
- биосферу (окружающую среду) – в контексте данной задачи совокупность всех элементов непосредственного окружения популяции человека, живущей в зоне, в которой она может подвергнуться радиационному воздействию хранилищ РАО [1].



Рис 1 Схематическое изображение многобарьерной системы изоляции РАО

Данные компоненты системы можно рассматривать как инженерные и естественные барьеры, выполняющие функции удержания (локализации) или замедления возможного распространения радионуклидов.

Безопасность ХТО обеспечивается на основе реализации принципов многобарьерной и эшелонированной защиты. Первый состоит в том, что взаимодействию между радионуклидами и окружающей средой препятствуют несколько инженерных и естественный барьер. При эшелонированной защите безопасность не зависит от какого-то одного барьера. При выходе барьера из строя, его защитную функцию берет на себя следующий. При этом безопасность ХТО обеспечивается не только техническими средствами, но и организационно-техническими мероприятиями. Нарушение целостности одного из барьеров в результате естественных процессов или вероятных внешних событий природного либо техногенного характера не приведет к недопустимому снижению уровня безопасности хранилищ РАО.

Физические барьеры ХТО относятся к локализирующим системам безопасности, которые предотвращают (удерживают) или ограничивают (замедляют) распространение радиоактивных веществ и ионизирующего излучения за предусмотренные проектом границы в условиях нормальной эксплуатации и при нарушениях нормальной эксплуатации.

Частичная или полная утрата защитных свойств инженерными барьерами может послужить иницирующим событием для отказа барьеров и привести к проектной аварийной ситуации. При нормальном функционировании естественного барьера такие ситуации не должны привести к превышению пределов, установленных в качестве критериев безопасности населения.

Естественный барьер, представленный несущим (при сооружении на поверхности) или вмещающим природным геологическим образованием (грунтом) и включающий как ближнюю, так и дальнюю зону, является последней физической преградой на пути возможного распространения радионуклидов в случае отказа всех инженерных барьеров. Его «отказ» может стать причиной запроектной аварии, приводящей к облучению населения и радиационному воздействию на окружающую среду выше пределов, установленных в качестве критериев безопасности. В силу данных обстоятельств остаточный ресурс естественного барьера является определяющим с точки зрения обеспечения безопасности ХТО. Величина отказа (критического события) не должна превышать 1×10^2 случаев в год.

При рассмотрении длительно функционирующих радиационно-опасных объектов, необходимо принимать во внимание, что оценка безопасности может различаться не только по степени детальности и достоверности информации, но также по своему характеру и рассматриваемым сценариям, возможным путям миграции радионуклидов в горизонтальном и нисходящем вертикальном направлениях. Миграция происходит при длительном воздействии негативных факторов на инженерные барьеры. Для прогнозирования миграции радионуклидов создана система геомониторинга, которая заключается в комплексе геологических, гидрогеологических, геофизических, геотермических и радиохимических исследований по разработанному регламенту. Объектами геомониторинга являются хранилища РАО, приконтурные зоны и породы вмещающего массива (Рис. 2).

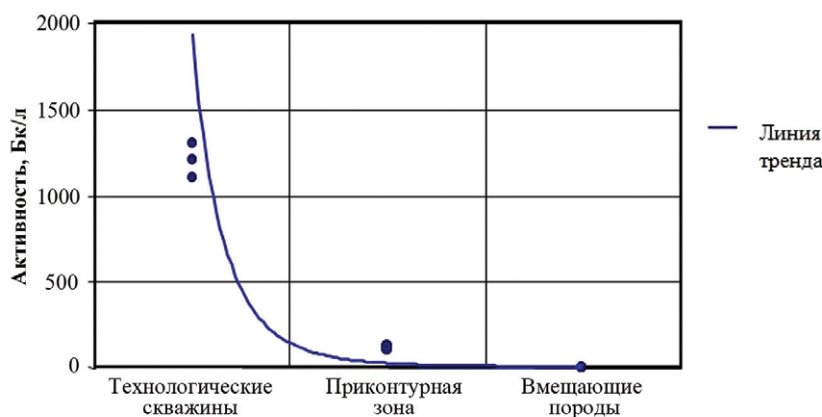


Рис.2 Изменение активности Cs-137 в системе «технологические скважины – приконтурная зона хранилища–вмещающие породы»

Данными многолетних исследований выявлена вертикальная зональность толщи РАО в хранилищах. Верхняя зона расположена до глубины 1,5-1,7 м от поверхности, нижняя - до основания хранилища. Верхняя зона массива РАО характеризуется высокой раздробленностью, значительной проницаемостью (K_{ϕ} достигает десятков м/сутки), относительно низкими значениями МЭД (редко превышает 10 мкЗв/ч). Для нижней зоны характерна достаточно высокая монолитность РАО, низкие значения проницаемости (K_{ϕ} редко превышает единицы м/сутки) и высокие значения МЭД (достигает сотен мкЗв/ч).

Доказано, что выявленная зональность массива РАО, обусловлена воздействием природных факторов, основными из которых являются сезонные процессы промерзания – оттаивания, приводящие к проникновению в разрушенную часть хранилищ атмосферных осадков и последующего выщелачивания радионуклидов из отходов.

Гидродинамическими исследованиями установлено, что хранилища заполнены водой. Практически в течение всего года воды хранилищ питают грунтовые воды приконтурной зоны, что способствует фильтрации вод за пределы хранилищ. Радиохимические анализы подтвердили наличие радионуклидов ^{137}Cs , H^3 в приконтурных зонах, причем участки с высокой концентрацией радионуклидов совпадают с ореолами вод величина рН которых, равна 9-10.

Горизонтальная миграция радионуклидов контролируется развитой дренажной системой на полигоне, наибольшую же опасность представляет вертикальная миграция, т.к. на глубине 60 м залегает первый водоносный горизонт. Результаты математического моделирования показали, что на период 300 лет проникновения радионуклидов ^{137}Cs с фоновым содержанием не превысит 4-5 м, а несорбирующего радионуклида H^3 - 20 м через 33 года. Данные радиохимических анализов воды из скважин, пробуренных ниже дна хранилищ, указали на глубину проникновения радионуклидов, равную 1,2 м, что совпадает с прогнозными расчетами. По этим расчетам можно сделать вывод, что загрязнение радионуклидами первого водоносного горизонта исключено.

В качестве исходных данных результаты геомониторинга использовались при разработке технологий по обеспечению безопасности хранилищ РАО приповерхностного типа, в частности при разработке, проведении и оценке эффективности повторного омоноличивания толщ РАО и создании многофункциональных покрытий. По результатам геомониторинга определено положительное влияние внедрения этих технологий.

Для решения задачи определения максимальной активности РАО наиболее подходящими представляются: оценка возможных состояний элементов системы, рассмотрение всех возможных путей и механизмов выноса и переноса радионуклидов от ХТО до границы СЗЗ и результатов их воздействия на человека и окружающую среду, рассмотрение всех возможных механизмов и путей облучения человека и тех ситуаций, которые могут к ним привести. Системное использование любого формализованного подхода при разработке и отборе сценариев, как правило, приводит к получению адекватной оценки безопасности.

Поверхностные стоки по дренажным канавам собираются в два пруда-отстойника, расположенные на промплощадке предприятия, в первом из которых происходит осаждение основной части взвесей загрязняющих веществ, а во втором – их доосаждение. Значения удельной активности сбросных вод по ^{137}Cs составляют $0,19 \pm 0,08$ Бк/л, по ^3H составляет $4,45 \times 10^3$ Бк/л.

Водоотведение с территории промплощадки формируется из промышленного стока и поверхностных дождевых, талых сточных вод с территории промплощадки. Промышленный сток предприятия составляет около 65% от общего стока, поверхностный – около 35%.

Промышленный сток состоит из производственных сточных вод, прошедших спецводоочистку, сбросных вод котельной и хозяйственных сточных вод. Все сточные воды перед сбросом проходят очистку на полях фильтрации. По западной, северной и восточной границе промплощадки проходят естественные водоразделы между притоками реки Дубна (Рис. 3).

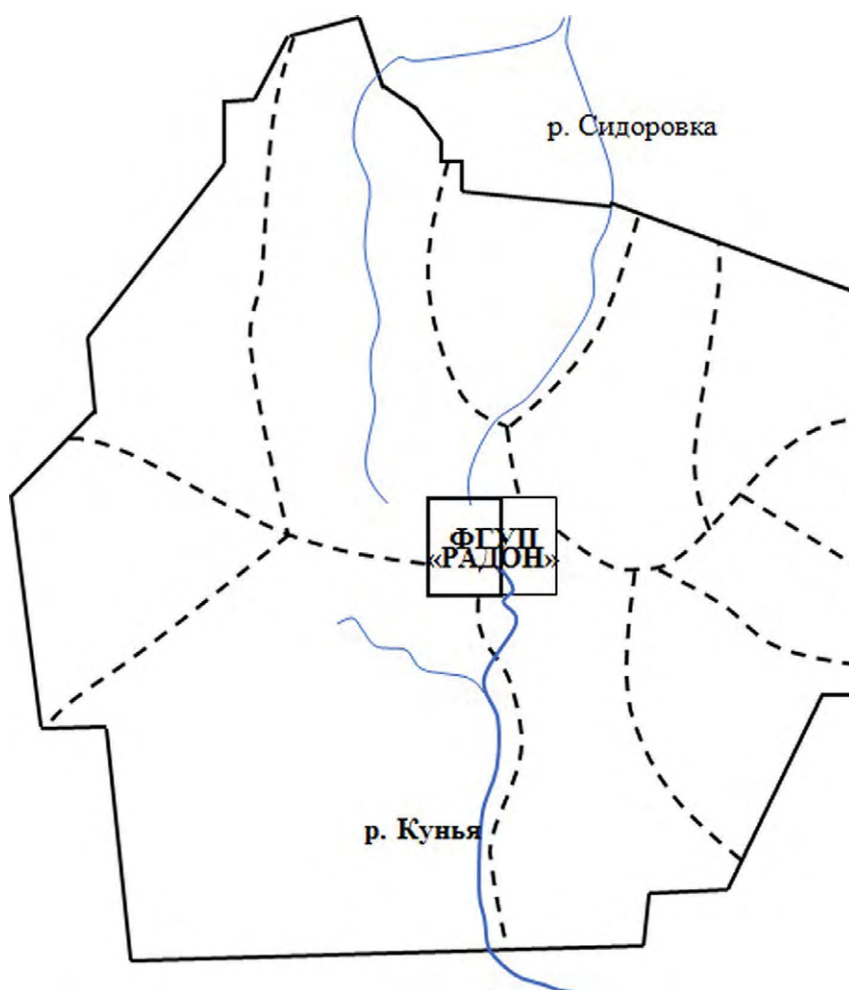


Рис 3 Схема формирования промышленного стока с промплощадки ФГУП «РАДОН»

Весь поверхностный сток направлен на юг в водоем приемник.

Затем на территории санитарно-защитной зоны предприятия после смешения поверхностных вод с промышленным стоком осуществляется дополнительная очистка этих вод в каскаде расположенных по течению ручья прудов-отстойников, после которых сбросные воды поступают в водоем приемник (Рис. 4).

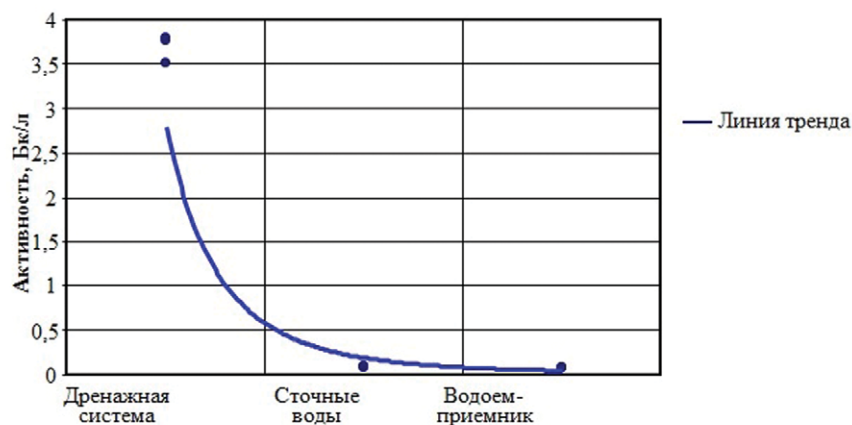


Рис. 4. Изменение активности воды в дренажной системе – водоеме – приемнике сточных вод – открытом водном объекте

Значения удельной активности воды в водоеме-приемнике по ^{137}Cs составляют $0,1 \pm 0,04$ Бк/л, по ^3H составляет $1,2 \times 10^2$ Бк/л.

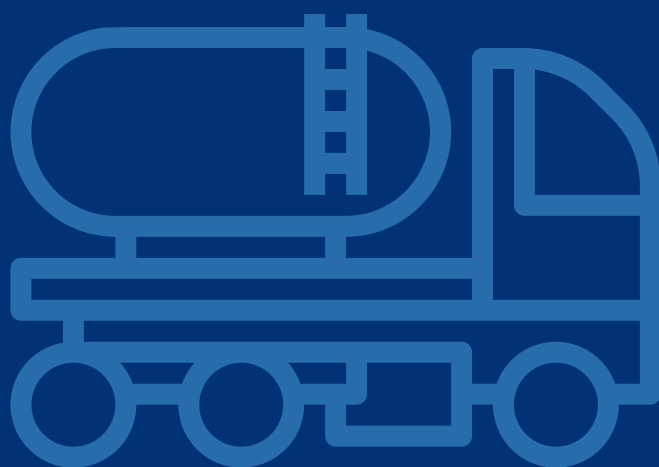
Проведенные исследования показывают, что в воде присутствуют природные ^{40}K , ^{226}Ra и техногенные ^{137}Cs и ^{90}Sr радионуклиды. Максимальные содержания радионуклидов на 2-3 порядка ниже установленных нормативов для питьевой воды [2, 3].

Таким образом, безопасность хранилищ РАО обеспечивается не только инженерными барьерами, но и организационно – техническими мероприятиями. Применение многобарьерной системы защиты призвано гарантировать, что нарушение целостности одного из барьеров в результате естественных процессов или вероятных внешних событий природного либо техногенного характера не приведет к недопустимому снижению уровня безопасности хранилищ РАО.

Список литературы

1. Технологические основы системы управления радиоактивными отходами. Дмитриев С.А., Баринов А.С., Батюхнова О.Г., Волков А.С., Ожован М.И., Щербатова Т.Д. Москва: ГУП МосНПО «Радон», 2007, 376 с.
2. Нормы радиационной безопасности (НРБ-99/2009). СП 2.6.1.2523-09. Издание официальное, Минздрав России. Москва. - 2009.
3. Руководство по методам контроля за радиоактивностью окружающей среды /Под ред. И.А. Соболева, Е.Н. Беляева. – М.: Медицина, 2002. – 432 с.

**Вывод
из эксплуатации
ЯРОО**



УДК 621.039.75

Деактивация радиоактивно загрязненного металла с использованием совмещенного ультразвукового электрохимического метода

Доильницын В.А.¹, Акатов А.А.¹, Лебедев Н.М.², Васильев А.П.³

¹Санкт-Петербургский государственный технологический институт (технический университет), Санкт-Петербург

²ООО «Александра-Плюс», Вологда

³АО «Научно-исследовательский и конструкторский институт энерготехники им. Н.А. Доллежаля», Москва

e-mail: doilnitsyn@mail.ru

Рассмотрены основы нового метода высокоэффективной жидкостной деактивации радиоактивно загрязненного металла с использованием совмещенного электрохимического и ультразвукового воздействия на систему металл-деактивирующий раствор. Результаты проведенных лабораторных и промышленных испытаний продемонстрировали возможность достижения высоких коэффициентов деактивации при относительно небольших объемах отработавших вторичных жидких радиоактивных отходов. Показана возможность переработки вторичных ЖРО штатными системами на базе выпарных аппаратов или новыми осадительно-сорбционными системами. На примере малогабаритной демонстрационной установки приводятся экономические показатели процесса деактивации. Рассмотрены возможные проблемные вопросы и пути их решения в процессе создания и эксплуатации установок деактивации металла с использованием совмещенного ультразвукового-электрохимического метода.

Ключевые слова: радиоактивно загрязненный металл, деактивация металла, интенсификация деактивации, ультразвук, анодное растворение металла, жидкие радиоактивные отходы, переработка отходов, экономические показатели процесса деактивации.

Decontamination of radioactively contaminated metal using combined ultrasonic-electrochemical method

Doilnitsyn V.A.¹, Akatov A.A.¹, Lebedev N.M.², Vasiliev A.P.³

¹Saint-Petersburg State Institute of Technology, Saint-Petersburg

²Alexandra-Plus, OOO, Vologda

³Dollezhal Scientific Research and Design Institute of Energy Technologies, AO, Moscow

e-mail: doilnitsyn@mail.ru

The bases of a new method of highly effective liquid decontamination of radioactively contaminated metal with the use of combined electrochemical and ultrasonic influence on the system of metal-decontaminating solution are considered. The results of laboratory and industrial tests have demonstrated the possibility of achieving high decontamination factors while relatively small amounts of secondary liquid radioactive waste are generated. The possibility of reprocessing of secondary LRW by standard systems based on evaporators or by new sedimentation and sorption systems was shown. The economic indicators of the decontamination process are given through the example of a small demonstration unit. Possible issues and ways of their solution in the process of creation and operation of metal decontamination units with the use of combined ultrasonic-electrochemical method are considered.

Keywords: radioactively contaminated metal, metal decontamination, enhancement of decontamination, ultrasound, anodic metal dissolution, liquid radioactive waste, waste treatment, economic indicators of the decontamination process.

Масштабный вывод из эксплуатации объектов использования атомной энергии: блоков АЭС, радиохимических производств и других ядерно и радиационно опасных объектов (ЯРОО) приводит к образованию больших количеств металлических радиоактивных отходов (МРАО). Например, при выводе из эксплуатации одного блока с реактором типа ВВЭР-1000 образуется более 4200 тонн очень низкоактивных и низкоактивных и около 1700 тонн среднеактивных металлических РАО. Еще большее количество МРАО образуется при выводе из эксплуатации энергоблоков с ректорами типа РБМК-1000 [1].

Проблема хранения и окончательной изоляции радиоактивно загрязненного металла сопряжена с очень большими финансовыми тратами, которые в значительной мере определяются не только стоимостью его переработки и кондиционирования, но и высокими тарифами Национального оператора на прием отходов для окончательной изоляции, а также высокой стоимостью контейнеризации и, в меньшей степени, транспортирования отходов.

В текущем 2019 году стоимость приема отходов третьего класса (САО и долгоживущие НАО) и четвертого класса (НАО и ОНАО) Национальным оператором составляет соответственно 45,8 тыс. рублей и 152 тыс. рублей с повышением до 55,2 тыс. рублей и 168 тыс. рублей к 2022 году [2]

В этой связи любые мероприятия по снижению объемов МРАО, направляемых на окончательную изоляцию, а также на перевод отходов в более низкий класс являются экономически привлекательными.

Дезактивация является одним из возможных методов решения указанных выше задач [3-5]. Одним из традиционно применяемых на предприятиях ядерного топливного цикла методов дезактивации является жидкостная дезактивация с использованием широкого круга растворов различных реагентов, при этом наиболее широко представлены различные модификации двухванного окислительно-восстановительного метода [1,3,8].

Практика использования жидкостной дезактивации выявила ряд ее существенных недостатков, к числу которых можно отнести низкую эффективность очистки металла от прочно фиксированных радиоактивных загрязнений [3], невысокую производительность, а также большие объемы образующихся при дезактивации отработавших растворов и промывных вод [3-5]. Отмеченные недостатки могут быть уменьшены путем интенсификации процесса погружной растворной дезактивации путем наложения внешнего ультразвукового поля. Результаты, полученные рядом исследователей [6,7], подтверждают правильность этого утверждения: коэффициенты дезактивации, скорость протекания процесса очистки металла существенно возросла, объемы отходов снижались значительно. Однако, системные исследования, проведенные нами с использованием реальных образцов радиоактивно загрязненного металла, выявили недостаточность ультразвуковой интенсификации для высокоэффективной дезактивации металла с прочнофиксированными пленочными оксидными загрязнениями, а также с загрязняющими радионуклидами, которые диффундировали в поверхностный слой металла-подложки.

Для удаления таких загрязнений предложено электрохимическое анодное или реверсивно-токовое травление металла [3,8]. Однако и этот метод не является универсальным для достижения высокой эффективности дезактивации – при наличии плотной оксидной пленки, обладающей высокой адгезией к поверхности металла, коэффициенты дезактивации недостаточно высоки.

В последние годы сформировалось еще одно направление интенсификации жидкостных дезактивационных процессов – сочетание химического растворения, ультразвукового и электрохимического воздействия на границу металл – раствор. Наиболее интенсивно это направление развивается в нашей стране усилиями Санкт-Петербургского государственного технологического института (технического университета), ООО «Александра-Плюс», АО НИКИЭТ, АО ВНИИНМ, ФГУП «РАДОН», а также ряда других предприятий и организаций [9-14].

Сочетанное воздействие ультразвука и электрического поля позволяет достичь:

- увеличения скорости массопереноса и снятия соответствующих ограничений для протекания тока (деполяризующее действие ультразвука сказывается, прежде всего, в уменьшении или полном устранении концентрационной поляризации);
- снижения адсорбции (удаление необратимо сорбированных примесей и предотвращение вторичной сорбции из раствора приводит к активации поверхности электрода, что облегчает протекание электрохимических процессов);
- очистки и интенсивного эрозионного воздействия на металл (удаление оксидных пленок и других загрязнений, постоянная дегазация, механическое воздействие на поверхность электрода облегчает протекание электрохимических процессов);
- энергичного перемешивания электролита по всему объему;
- удаление газов из электролита, что повышает его электропроводность.

При правильном подборе параметров ультразвуковой обработки электрохимической системы и состава электролита (дезактивирующего раствора) можно добиться значительного роста эффективности и скорости протекания процессов обработки поверхности металла, а также снижения расходов на ее проведение[15].

На рисунках 1-3 показаны результаты дезактивации образцов реальных МРАО, полученные при проведении экспериментов в Ленинградский филиале ФГУП «РосРАО» и в АО «Экомет-С».

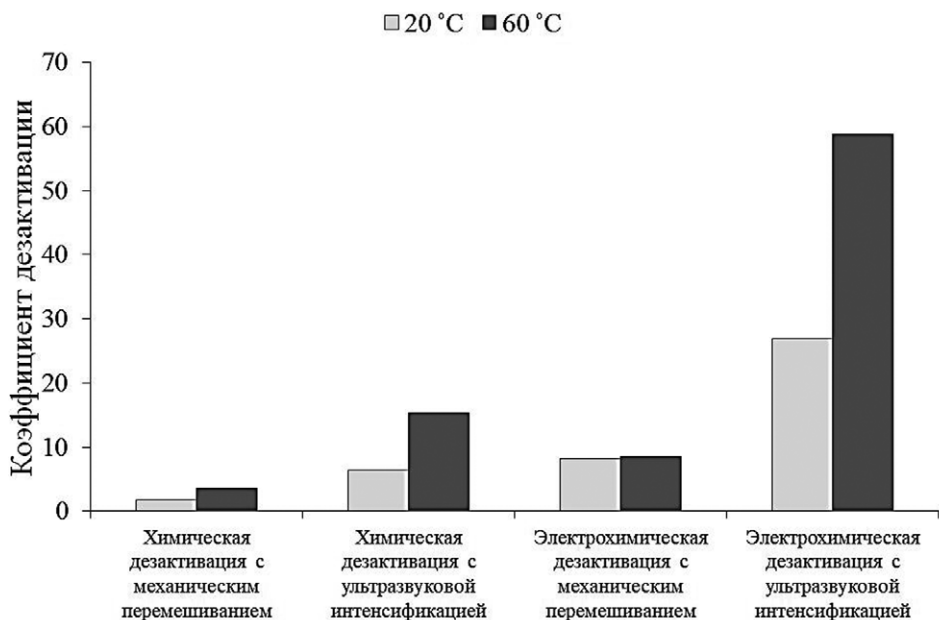


Рис.1 Коэффициенты дезактивации образцов радиоактивно загрязненной нержавеющей стали при различных условиях обработки в 30 г/дм³ растворе серной кислоты

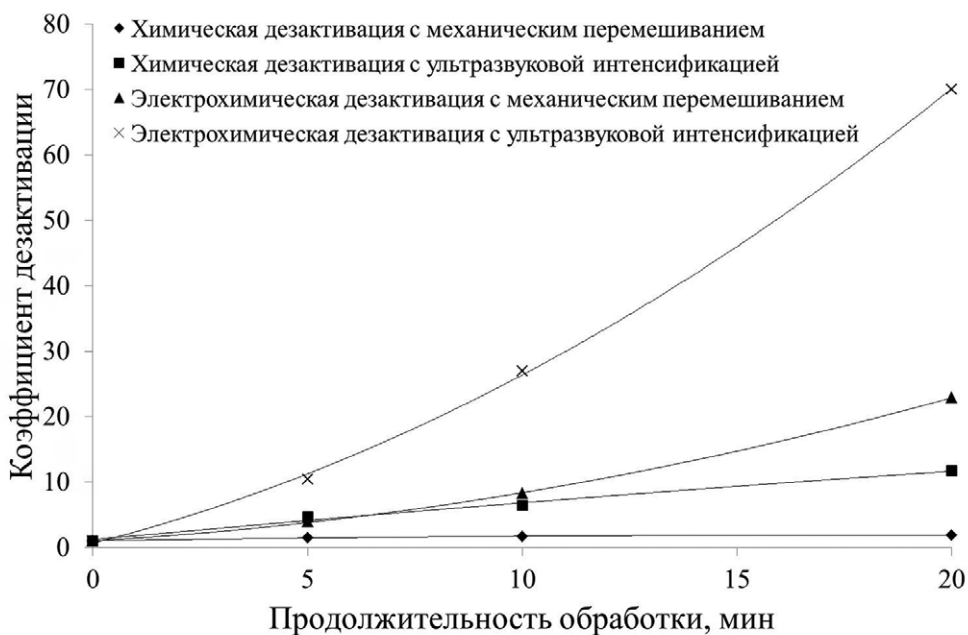


Рис.2 Дезактивация нержавеющей стали при различных условиях обработки в 30 г/дм³ растворе серной кислоты при 20°C

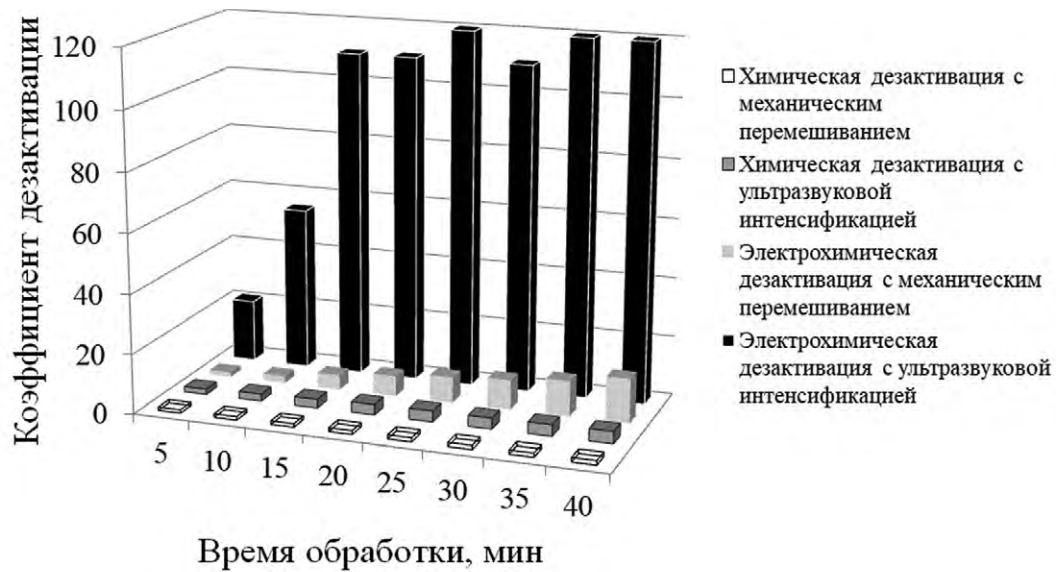


Рис.3 Динамика дезактивации нержавеющей стали при различных условиях обработки в 30 г/дм³ растворе серной кислоты при 20°С

Представленные результаты демонстрируют высокую эффективность дезактивации металла методом совмещенной ультразвуковой – электрохимической дезактивации. Значительная часть образцов имела остаточную загрязненность на уровне фона.

В процессе проведения исследований значительное внимание было уделено подбору дезактивирующих растворов. В результате этих исследований установлена целесообразность применения растворов на основе неорганических кислот: азотной, серной, фосфорной или их смесей. Перспективна также щавелевая кислота. В случае применения азотной кислоты, переработка отработавших дезактивирующих растворов и сопутствующих промывных вод может быть выполнена с использованием штатной системы переработки ЖРО на основе выпарки и доочистки конденсата ионообменными фильтрами. Использование других указанных выше кислот потребует разработки нестандартных систем переработки вторичных ЖРО.

Для оценки экономических показателей предлагаемого метода интенсифицированной дезактивации были выполнены расчеты себестоимости дезактивации металла среднего уровня активности при производительности демонстрационной установки 278 тонн/год. Учитывались затраты, связанные непосредственно с самой дезактивацией, а также с переработкой образующихся ЖРО, их кондиционированием, контейнеризацией и передачей Национальному оператору для окончательной изоляции. Учитывалась также стоимость хранения НАО и ОНАО, полученных при переработке САО, на площадке объекта (АЭС) в течение длительного времени. Расчетное значение себестоимости составило около 83000 рублей/тонну МРАО при уровне накладных расходов на переработку 22,8%. Структура себестоимости представлена на рисунке 4.



Рис.4 Структура полной себестоимости дезактивации МРАО, переработки вторичных отходов с размещением НАО и ОНАО на площадке АЭС и с передачей САО Национальному оператору

Увеличение накладных расходов приведет к росту себестоимости. Например, при увеличении накладных расходов до 60-70% себестоимость дезактивации может подняться до 114000-122000 рублей/т МРАО.

Анализ структуры себестоимости выявляет еще одну характерную особенность – очень большой вклад в величину себестоимости дает составляющая, связанная с контейнеризацией кондиционированных РАО и с их передачей Национальному оператору.

Для реализации разработанного метода дезактивации одной ультразвуковой-электрохимической ванны будет недостаточно – потребуется установка, включающая в себя дополнительную ультразвуковую ванну последезактивационной промывки металла, а также ванну (камеру) сушки. Кроме того, в состав установки войдет баковое (емкостное) оборудование для подготовки дезактивирующих растворов, приема отработавших дезактивирующих растворов и промывных вод, а также насосное и другое оборудование. С учетом высокого уровня радиационной опасности может потребоваться дистанционное обслуживание установки с возможностью выполнения работ как в ручном, так и в автоматическом режиме. Прототипом такой установки может служить установка МО-491 (рисунок 5), разработанная ООО «Александра-Плюс» для химической промывки мелко- и среднеразмерного оборудования машиностроительных предприятий.



Рис.5 Автоматическая комплексная ультразвуковая установка МО-491

Установка совмещенной ультразвуковой-электрохимической дезактивации может быть частью комплекса по дезактивации МРАО. Комплекс должен включать в себя:

- участок фрагментации и сортировки МРАО;
- участок абразивной (дробеструйной / пескоструйной очистки);
- участок жидкостной дезактивации, в составе которого должна быть установка совмещенной УЗ-ЭХ дезактивации;
- участок контроля остаточного радиоактивного загрязнения металла (участок паспортизации).

Можно полагать, что в настоящее время имеются предпосылки для создания такого комплекса в демонстрационном, а затем и в промышленном масштабе.

Дополнительные вопросы, которые могут потребовать решения в ближайшем будущем сводятся к следующему:

- необходимо разработать устройства (корзины, барабаны и др.), позволяющие перемещать дезактивируемый металл в объеме ванны для ликвидации т.н. «теневых» эффектов дезактивации – снижения коэффициентов дезактивации металла, находящегося в глубинных слоях при загрузке ванны навалом;
- необходимо разработать конструкции ванн, приспособленных для дезактивации металлоизделий определенной формы, например ванн для дезактивации труб, ванн для дезактивации листового металла и т.д.;
- требуется отработать технологию резонансного ультразвукового-электрохимического метода дезактивации крупногабаритного оборудования;
- требуется отработать методики низкофонового высокопроизводительного дозиметрического контроля (паспортизации) металла, прошедшего дезактивацию.

Список литературы

1. Технологии обеспечения радиационной безопасности на объектах с ЯЭУ: Монография / Под общ. ред. В.А. Василенко. – СПб.: ООО «НИЦ Моринтех», 2010. – 576с.
2. Приказ Федеральной антимонопольной службы от 28 декабря 2017 г. N 1812/17 «Об установлении тарифов на захоронение радиоактивных отходов классов 1, 2, 3, 4, 6 на период с 2018 по 2022 годы и тарифов на захоронение радиоактивных отходов класса 5 на 2018 год» // Информационно-правовой портал «Гарант.Ру». – URL: <https://base.garant.ru/71892468/> (дата обращения 01.04.2019).
3. Дезактивация объектов ядерного топливного цикла. Вып.1 Основы дезактивации. Способы и технические средства дезактивации: Монография / Под общ. ред. В.Г.Крицкого. – СПб.: КСИ-Принт, 2013. – 464 с.
4. Лучшие зарубежные практики вывода из эксплуатации ядерных установок и реабилитации загрязненных территорий: Т.1./Цебаковская Н.С., Уткин С.С., Иванов А.Ю. и др./ Под ред. И.И.Линге, А.А.Абрамова. –М.: ИБРАЭ РАН, 2017.- 336с.
5. Лучшие зарубежные практики вывода из эксплуатации ядерных установок и реабилитации загрязненных территорий: Т.2./Цебаковская Н.С., Уткин С.С., Иванов А.Ю. и др./ Под ред. И.И.Линге, А.А.Абрамова. –М.: ИБРАЭ РАН, 2017.- 187с.
6. Н.М. Лебедев, А.Е. Савкин, О.К. Карлина, А.П. Васильев, В.М. Малинкин, Г.В. Дубинин, Б.А. Смирнов. Испытания ультразвуковой установки для дезактивации металлических РАО. Безопасность окружающей среды, 2007. – №3. – с. 38-41.
7. А.Е. Савкин, О.К. Карлина, А.П. Васильев. Ультразвуковая дезактивация чехлов для ОЯТ. Безопасность окружающей среды, 2010. – №1. – с. 116-119.
8. Ампелогова, Н.И. Дезактивация в ядерной энергетике / Н.И. Ампелогова, Ю.М. Симановский, А.А. Трапезников. – М.: Энергоиздат, 1982. – 256 с.
9. Пат. 2384906 Российская Федерация, МКИ G21F9. Ультразвуковая установка для дезактивации металлических деталей/ Н.М.Лебедев, А.П.Васильев, Г.В.Дубинин, В.Н.Коваленко, А.Е.Савкин, В.Ю.Сердитов, А.В.Коняхин; № 2008107119/06; заявл. 27.02.2008; опубл. 10.09.2009, Бюл. № 8. – 5 с.
10. Пат. 2635202 Российская Федерация, МКИ G 21F9 / 28, С 22В60 / 00. Способ переработки металлов, содержащих прочнофиксированные поверхностные радиоактивные загрязнения / Н.М. Лебедев, В.Н. Коваленко, А.Н. Арефьева, А.А. Акатов, В.А. Доильницын, Ю.С. Коряковский, П.И. Черемисин; № 2015146215; заявл. 28.10.2015; опубл. 09.11.2017, Бюл. № 31. – 12 с.
11. Заявка 2015147448 Российская Федерация, МКИ G 21F9 / 00. Комплексная установка дезактивации твердых радиоактивных отходов и кондиционирования образующихся жидких радиоактивных отходов / Н.М. Лебедев, В.Н. Коваленко, А.Н. Арефьева, А.А. Акатов, В.А. Доильницын, Ю.С. Коряковский, П.И. Черемисин; заявитель общество с ограниченной ответственностью «Александр-Плюс». – № 2015147448; заявл. 31.03.2016; опубл. 03.10.2017, Бюл. № 28. – 1 с.

12. Универсальный промышленный комплекс для дезактивации металлических радиоактивных отходов с использованием ультразвука и электрохимии / Н.М. Лебедев, А.Н. Арефьева, А.П. Васильев, Г.В. Дубинин, В.А. Доильницын, А.А. Акатов // Сб. докладов IV Международной научно-технической конференции «Инновационные проекты и технологии ядерной энергетики» (Москва, 27–30 сентября 2016 г.). – М.: Изд-во АО «НИКИЭТ», 2016. – Т. 1. – С. 489-494.
13. Повышение эффективности дезактивации металлических радиоактивных отходов с использованием ультразвука и электрохимии / Н.М. Лебедев, А.Н. Арефьева, А.П. Васильев, Г.В. Дубинин, В.А. Доильницын, А.А. Акатов // Пленарные и секционные доклады десятой международной научно-технической конференции «Безопасность, эффективность и экономика атомной энергетики» (Москва, 25-27 мая 2016 г.). – М.: Росэнергоатом, 2016. – с. 358-361.
14. Инновационные ультразвуковые технологии в ядерной энергетике / Н.М. Лебедев, А.Н. Грот, И.Г. Симаков, О.Ю. Лебедев, А.П. Васильев, В.А. Доильницын, А.А. Акатов // Сб. докладов «V Международной научно-технической конференции «Инновационные проекты и технологии ядерной энергетики» (МНТК НИКИЭТ – 2018)» (Москва, 2-5 октября 2018 г.) [Электронный ресурс]. – Электрон. текст. дан. – М.: Изд-во АО «НИКИЭТ», 2018. – С. 619-628.
15. Агранат, Б.А. Основы физики и техники ультразвука: Учеб. пособие для вузов / Б.А. Агранат, М. Н. Дубровин, Н. Н. Хавский и др. – М.: Высш. шк., 1987. – 352с.

УДК 621.039.75

Процедура ВЭ ЯРОО: 6+ шагов практической реализации

Ильин В.А.
ФГУП «РАДОН»
e-mail:VaAllyin@radon.ru

Информационный материал посвящен вопросу подхода к практической реализации процедуры вывода из эксплуатации ядерно и радиационно опасных объектов. В представленном материале дается краткое описание организационно-технических мероприятий всех этапов процедуры вывода из эксплуатации ядерно и радиационно опасных объектов.

Ключевые слова: вывод из эксплуатации, радиоактивные отходы, ядерно и радиационно опасные объекты, комплексное инженерное радиационное обследование

Nuclear and radiation hazardous objects decommissioning: 6+ steps of procedure

Ilyin V.A.
FSUE «RADON»
e-mail:VaAllyin@radon.ru

The information below is about approach to practice in decommissioning nuclear and radiation hazardous objects. It briefly describes organizational and technical steps of all the stages of decommissioning the nuclear and radiation hazardous objects.

Keywords: decommissioning , radioactive waste, nuclear and radiation hazardous objects, complete engineer and radiation examination

Введение

В феврале 2008 года Государственная корпорация «Росатом» (ГК«Росатом») разработала и опубликовала в рабочем порядке документ под названием «Концепция вывода из эксплуатации ядерных установок, радиационных источников и пунктов хранения» (Концепция). Актуализированная версия Концепции была утверждена приказом ГК «Росатом» №1/645-П от 15.07.2014 [1].

Концепция определяет деятельность ГК «Росатом» по выводу из эксплуатации ядерно и радиационно опасных объектов (ВЭ ЯРОО) на период до 2030 года с актуализацией (при необходимости) в 2016-2017 гг. по результатам выполнения действующей федеральной целевой программы ядерной и радиационной безопасности (ФЦП ЯРБ) [2].

Положения Концепции распространяются на принадлежащие Российской Федерации, а так же учреждениям и подведомственным предприятиям, акционерным и дочерним обществам, входящим в контур ГК «Росатом»: ядерные установки, радиационные источники, пункты хранения ядерных материалов (ЯМ), радиоактивных веществ (РВ) и радиоактивных отходов (РАО) и/или их части, выполняющие функции ядерной установки, радиационного источника или пункта хранения в объеме, определенном проектами их сооружения.

К настоящему времени на предприятиях ГК «Росатом» остановлено, но не выведено из эксплуатации около полутора сотен ядерных и радиационно опасных объектов, число которых по прогнозным оценкам специалистов ГК «Росатом» в дальнейшем будет только увеличиваться.

В связи с выходом в свет Концепции ГК «Росатом», а также тем, что значительная часть собственных ЯРОО – радиационно опасных объектов пункта хранения радиоактивных отходов (ПХРО) ФГУП «РАДОН», была построена и введена в эксплуатацию в период с 1961 по 1990 год, на предприятии возникла необходимость подготовки к выполнению работ по ВЭ этих объектов. Опыт практических работ по ВЭ ЯРОО в Российской Федерации еще сравнительно не большой. И, тем не менее, опираясь на многолетний практический опыт специалистов ФГУП «РАДОН» в выполнении радиационно-аварийных работ на различных объектах страны, работ по реабилитации радиоактивно загрязненных территорий и дезактивации производственного оборудования и площадей, опыт в аналогичных работах других организаций ГК «Росатом», а так же нормативно-правовую базу, которая постоянно обновляется и пополняется новыми документами, подготовлен ниже представленный информационный материал.

Основная цель представленного информационного материала – краткое описание идеологии практического подхода к процедуре вывод ядерно и радиационно опасных объектов из эксплуатации, т.е. выведению ЯРОО из-под ядерного и радиационного контроля, на примере возможной организации в ближайшей перспективе процедуры ВЭ объектов ПХРО, расположенных на площадке ФГУП «РАДОН».

ОИАЭ И ЯРОО: термины и их определения

Вывод из эксплуатации ЯРОО – деятельность на завершающей стадии жизненного цикла ОИАЭ после его окончательного останова, направленная на достижение установленного проектом ВЭ конечного состояния объекта в целях его полного или частичного освобождения из-под контроля органов регулирования безопасности в соответствии с действующими нормами и правилами [1].

В нормативной и технической литературе в равной степени часто используют два терминологических понятия – объект использования атомной энергии – ОИАЭ и ядерно и радиационно опасный объект – ЯРОО.

Согласно [3] «Объекты использования атомной энергии – объекты, представляющие собой ядерные установки, радиационные источники, пункты хранения ядерных материалов и радиоактивных веществ, хранилища радиоактивных отходов, тепловыделяющие сборки ядерного реактора, облученные тепловыделяющие сборки ядерного реактора, ядерные материалы, радиоактивные вещества, радиоактивные отходы».

Согласно [1] «Ядерно и радиационно опасный объект(ы) (ЯРОО) – выше перечисленные ОИАЭ и/или их части, [4] ОИАЭ в объеме, определенном проектами их сооружения в целом или их составных частей, в отношении которых принято отдельное решение о выводе из эксплуатации».

Переход объекта из категории ОИАЭ в категорию ЯРОО носит условный характер.

В практических целях в настоящем информационном материале и для понимания процедуры ВЭ в целом следует дать следующее определение этим связанным между собой терминологическим понятиям. ОИАЭ – это объекты, находящиеся на любой стадии безаварийной эксплуатации согласно проектной документации, вывод из эксплуатации которых может быть обусловлен только окончанием (не продлением [5]) срока эксплуатации.

Ядерно и радиационно опасные объекты – это объекты использования атомной энергии, эксплуатация которых остановлена по следующим основным причинам:

- их аварийного состояния и экономической нецелесообразности дальнейших восстановительных мероприятий;
- их безаварийного состояния и экономической нецелесообразности дальнейшего использования.

Все остальные термины и определения, используемые в настоящем информационном материале, представлены в документе [1].

Процедура вывода из эксплуатации

В целом процедуру вывода из эксплуатации можно разделить на три этапа: подготовительный, основной и заключительный. Каждый этап в свою очередь предусматривает выполнение определенных мероприятий или целого комплекса мероприятий – шагов, обязательность выполнения которых ведет к эффективному и успешному завершению всей процедуры ВЭ объекта.

На блок-схеме (Рис. 1) представлен порядок организационно-технических и практических мероприятий процедуры ВЭ ОИАЭ.

Организационно-технические и практические мероприятия процедуры ВЭ ОИАЭ разбиты на отдельные шаги в логической последовательности их исполнения. Представленный порядок не следует считать строго жестким: конкретные объекты и условия могут накладывать определенные коррективы в этот порядок, например, в отправную точку начала процедуры ВЭ, в объем формируемой документации, перечень уполномоченных организаций и т.д.

Следя поэтапному разделению процедуры ВЭ, представленные в блок-схеме шаги можно отнести к отдельным этапам следующим образом:

Подготовительный этап – шаги 1–3;

Основной этап – шаги 4–5;

Заключительный этап – шаг 6.

Рассмотрим мероприятия по процедуре ВЭ ОИАЭ поэтапно.

Шаг 0

Шаг 0 отстоит обособлено от всех остальных шагов. Этот шаг можно было бы отнести к подготовительному этапу, если бы не ниже следующие обстоятельства.

Согласно [6] «На всех стадиях жизненного цикла ОИАЭ, предшествующих его выводу из эксплуатации, должно осуществляться планирование вывода из эксплуатации ОИАЭ на основе дифференцированного подхода в зависимости от сложности и специфики ОИАЭ, площадки (места) его размещения, а также от категории его потенциальной радиационной опасности». Кроме того, планирование ВЭ ОИАЭ должно подкрепляться сбором и консолидацией полной информации о жизненном цикле объекта, т.е. еще на стадиях размещения, проектирования и строительства должна быть создана информационная система – база данных, в которой на протяжении всего жизненного цикла объекта должны фиксироваться и актуализироваться все фактические события, происходящие на объекте и имеющие отношение к объекту, в том числе и информация по комплексному инженерному и радиационному обследованию (КИРО). Получаемая в базу данных об объекте информация формирует ту основу, на которой создаются такой важный документ как концепция вывода объекта из эксплуатации (КВЭ) и раздел ВЭ в отчете обеспечения безопасности объекта (ООБ).

В проектную и эксплуатационную документацию недавно введенных в эксплуатацию объектов или только строящихся ОИАЭ уже заложена информация о порядке организации процедуры их ВЭ. Однако, сегодня так же сложилась и такая ситуация, что по факту на многих предприятиях и в организациях атомной отрасли, входящих в ГК «Росатом», есть достаточно большое количество объектов, относящихся к категории «ядерного наследия». Условно к таким объектам относятся ОИАЭ, введенные в эксплуатацию до 2011 года, т.е. до вступления в силу Федерального закона №190-ФЗ [7]. В проектной документации объектов «ядерного наследия» многих предприятий и организаций атомной отрасли нет КВЭ и полноценного раздела ВЭ в ООБ, т.к. вопросы вывода из эксплуатации на момент проектирования этих объектов практически не рассматривались. Аналогичная ситуация и с базой данных по объектам «ядерного наследия». ФГУП «РАДОН» в данном случае не исключение и является «отрицательным» примером такого положения дел с информационной обеспеченностью по объектам ПХРО для целей ВЭ.

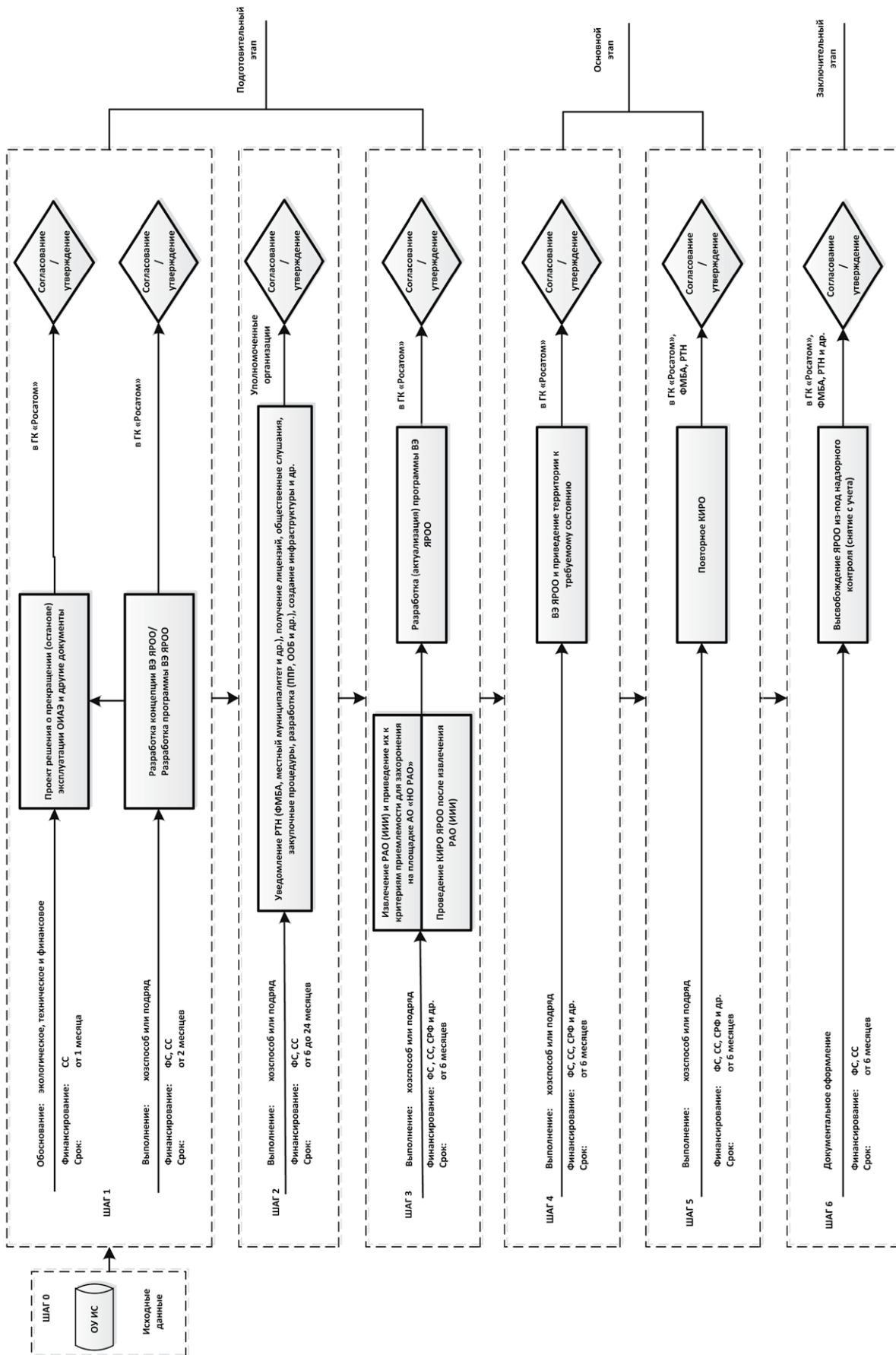


Рис 1 Организационно-технические мероприятия процедуры ВЭ ОИАЭ

Для эффективного планирования ВЭ ОИАЭ в отрасли, начиная с конца 2015 года, принята в промышленную эксплуатацию информационная система (база данных) – корпоративного уровня отраслевая информационная система вывода из эксплуатации ядерно и радиационно опасных объектов (КУ ОИС ВЭ ЯРОО), которая должна консолидировать информацию по всем объектам отрасли с целью формирования прогноза ежегодных, краткосрочных (в перспективе на каждые ближайшие 5 лет) и долгосрочных (до 2050 года) финансовых затрат на процедуру ВЭ ОИАЭ. Результаты почти двухлетней эксплуатации КУ ОИС ВЭ ЯРОО показали необходимость обеспечить предприятия атомной отрасли информационной системой объектового уровня (ОУ ОИС ВЭ ЯРОО). Основная причина – КУ ОИС ВЭ ЯРОО не может учитывать специфические технические и технологические особенности каждого отдельно взятого ОИАЭ [8, 9]. В АО «НИКИЭТ» в октябре 2018 года была завершена работа по разработке прототипа ОУ ОИС ВЭ ЯРОО. В настоящее время в режиме “start-up” находится проект по внедрению и опытно-промышленной апробации ОУ ОИС ВЭ ЯРОО на четырех предприятиях ГК «Росатом», включая и ФГУП «РАДОН». Проект будет полноценно запущен после согласования и утверждения объемов финансирования. Финансирование проекта планируется из специального резервного фонда №3 (СРФ). Сроки исполнения проекта – до конца 2020 года или середины 2021 года.

Реализация проекта ОУ ОИС ВЭ ЯРОО позволит в самые кратчайшие сроки обеспечить Шаг 0 информационной поддержкой, а это значит – эффективнее выполнять последующие шаги процедуры ВЭ ЯРОО.

Шаги 1-3

Подготовительный этап процедуры ВЭ ЯРОО является продолжительным. Согласно документу [1] этот этап может занимать 5-7 лет. Представленные в блок-схеме (Рисунок) сроки определены на основе оптимистичной экспертной оценки только для ОИАЭ ФГУП «РАДОН» и при определенных благоприятных условиях могут укладываться в рамки до 3-4 лет.

Финансирование работ подготовительного этапа может осуществляться из собственных средств предприятия (СС – коммерческая прибыль и др.), из средств, поступающих в форме федеральной субсидии (ФС), из специального резервного фонда №3 (СРФ), а так же других источников (средства инвестиционных фондов и др.).

Выполнение работ подготовительного этапа может осуществляться с использованием материально-технических средств и кадровых ресурсов самой эксплуатирующей организации (хозяйственный способ), либо с привлечением сторонних организаций (подрядный способ). Возможен так же вариант долевого использования подряда при выполнении работ хозяйственным способом и наоборот.

Ключевыми моментами подготовительного этапа являются: решение о прекращении (останове) эксплуатации ОИАЭ, разработка концепции ВЭ ЯРОО (при условии ее отсутствия) и программы ВЭ ЯРОО, проведение организационно-правовых мероприятий.

Решение о прекращении (останове) эксплуатации ОИАЭ формируется в виде проекта решения, включающего в себя само решение с указанием цели и оснований принятого эксплуатирующей организацией решения и обосновывающие его материалы. Проект решения направляют на согласование и утверждение в ГК «Росатом» в Дирекцию по государственной политике в области РАО, ОЯТ и ВЭ ЯРОО. К рассмотрению принимают только полный комплект документов по проекту решения. Срок рассмотрения проекта решения определен внутренним регламентом Канцелярии ГК «Росатом», но не более 15 рабочих дней. В случае отрицательного ответа по проекту решения о прекращении (останове) эксплуатации ОИАЭ эксплуатирующая организация получает уведомление с указанием причин отклонения (несогласования). После внесения требуемых корректировок в проект решения эксплуатирующая организация в праве повторно направить проект решения на рассмотрение.

После утверждения проекта решения о прекращении (останове) ОИАЭ эксплуатирующая организация приступает к подготовке и выполнению организационно-правовых мероприятий. Организационно-правовые мероприятия включают в себя следующие процессы:

- подготовка и отправка на согласование уведомлений о намерении ВЭ ЯРОО в адрес регулирующих деятельность органов (Ростехнадзор – РТН, Федеральное медико-биологическое агентство – ФМБА);
- отправка на согласование уведомлений о намерении ВЭ ЯРОО в адрес местного муниципалитета (для организации общественных слушаний);
- подготовка комплекта документов на получение требуемых для ВЭ ЯРОО лицензий (в случае их отсутствия);
- подготовка технологического регламента (ТР) работ по ВЭ ЯРОО;
- подготовка порядка проведения работ (ППР) по ВЭ ЯРОО;
- подготовка отчета по обоснованию безопасности (ООб) при ВЭ ЯРОО.

В разделах документов ТР, ППР и ООБ должны быть определены материально-технические средства и оборудование необходимые для безопасного проведения работ процедуры ВЭ ЯРОО на каждом этапе. В обеспечение работ материально-техническими средствами и оборудованием, а так же создания необходимой инфраструктуры для проведения работ в условиях высокой радиационной опасности проводятся закупочные мероприятия.

После успешного завершения организационно-правовых мероприятий, приобретения материально-технических средств и оборудования, создания инфраструктуры на объекте проведения работ по ВЭ, получения санитарно-эпидемиологического заключения на работы проводят работы по удалению ЯМ/РАО/ИИИ (источников ионизирующего излучения) из ЯРОО и их переработке и кондиционированию с целью приведения в соответствие с требованиями долговременного хранения или захоронения.

В освобожденном от ЯМ/РАО/ИИИ объекте проводят КИРО для актуализации или повторной разработки программы ВЭ ЯРОО и ее согласования и утверждения в ГК «Росатом» в Дирекции по государственной политике в области РАО, ОЯТ и ВЭ ЯРОО.

Финансирование, сроки выполнения, способы выполнения подготовительного этапа представлены на блок-схеме (Рис. 1).

Шаги 4-5

Работы основного этапа связаны непосредственно с ВЭ ЯРОО, т.е. проведением дезактивационных работ на объекте, демонтажем конструктивных элементов объекта и приведением территории размещения объекта в соответствие требованиям экологически безопасного состояния. Работы проводятся согласно положениям ТР, ППР и ООБ, а также нормам и правилам безопасности выполнения работ по ВЭ ЯРОО и внутренним инструкциям по радиационной безопасности.

На основном этапе ВЭ ЯРОО, после завершения мероприятий приведения территории размещения объекта в соответствие требованиям экологически безопасного состояния, проводят повторное КИРО, которое должно подтвердить возможность дальнейшего использования этой территории в общепроизводственных целях.

Документообеспечение мероприятий основного этапа в обязательном порядке согласовывается и утверждается в ГК «Росатом» и надзорными органами (РТН, ФМБА и др.).

Финансирование, сроки выполнения, способы выполнения основного этапа представлены на блок-схеме (Рис. 1).

Шаг 6

Мероприятия заключительного этапа носят в основном юридический характер. Проводится документальное оформление о высвобождении ЯРОО из-под надзорного контроля, вносятся изменения в документацию имущественных прав, и принимается решение о дальнейшем использовании территории размещения объекта.

Финансирование, сроки выполнения, способы выполнения заключительного этапа представлены на блок-схеме (Рис. 1).

Заключение

Представленный информационный материал подготовлен с целью описания порядка подготовки и проведения процедуры ВЭ ЯРОО и носит рекомендательный характер. Разнообразие ЯРОО, их технического состояния и условий эксплуатации может вносить коррективы в отдельные мероприятия представленного порядка, но в целом порядок остается неизменным.

Накапливаемый ежегодно опыт по ВЭ ЯРОО позволит оптимизировать и повысить эффективность процедуры ВЭ ЯРОО.

Список литературы

1. Концепция вывода из эксплуатации ядерных установок, радиационных источников и пунктов хранения. Утверждена приказом Госкорпорации «Росатом» №1/645-П от 15.07.2014
2. Федеральная целевая программа «Обеспечение ядерной и радиационной безопасности на 2016 – 2020 годы и на период до 2030 года» от 19.11.2015 №1248.
3. Федеральные нормы и правила в области использования атомной энергии «Учет внешних воздействий природного и техногенного происхождения на объекты использования атомной энергии» (НП-064-05).
4. Постановление Правительства РФ от 30.12.2012 №1494 «Об утверждении Положения об отнесении объектов использования атомной энергии к отдельным категориям и определении состава и границ таких объектов».
5. Федеральные нормы и правила «Требования к обоснованию возможности продления назначенного срока эксплуатации объектов использования атомной энергии» (НП-024-2000).
6. Федеральные нормы и правила «Обеспечение безопасности при выводе из эксплуатации объектов использования атомной энергии. Общие положения» (НП-091-14).
7. Федеральный закон «Об обращении с радиоактивными отходами и внесении изменений в отдельные законодательные акты Российской Федерации» от 11.07.2011 №190-ФЗ.
8. Отчет об обследовании в рамках разработки Концепции отраслевой информационной системы вывода из эксплуатации ядерно и радиационно опасных объектов, АО «НИКИЭТ» 2016 г.
9. Отчет об обследовании в рамках проекта по разработке прототипа информационной системы объектового уровня отраслевой информационной системы вывода из эксплуатации ЯРОО, АО «НИКИЭТ» 2017 г.

Авторы

А

Акопова Н.А.	87
Алехнович А.В.	87

В

Ванина Е.А.	87
Веселова Е.С.	57
Волков Е.С.	42

Д

Доильницын В.А.	100
Дружинина Ю.В.	87

Е

Ермолина Е.П.	87
---------------	----

З

Закотеев Ю.А.	82
---------------	----

И

Ильев А.А.	64
Ильин В.А.	107

К

Карлин Ю.В.	12
-------------	----

Л

Лебедева О.М.	94
---------------	----

М

Магомедбеков Э.П.	35
-------------------	----

О

Осташкина Е.Е.	49
Охрименко С.Е.	87

П

Павлова Г.Ю.	42
Пархоменко И.А.	6
Перцов В. А.	87
Пташкин А.Г.	65

Р

Растунова И.Л.	35
----------------	----

С

Савкин А.Е.	12, 49
Сластенников Ю.Т.	42
Стефановский С.В.	19

Ц

Цейтин К.Ф.	72
-------------	----

делаем мир чище и безопаснее

ФГУП «РАДОН». ПРЕДПРИЯТИЕ ГОСКОРПОРАЦИИ «РОСАТОМ»

Федеральное государственное унитарное предприятие
«Объединённый эколого-технологический и научно-исследовательский
центр по обезвреживанию РАО и охране окружающей среды»



Московский офис
119121, Москва, 7-й Ростовский пер, 2/14
тел.: +7 (495) 545-57-67



НПК
141335, Сергиево-Посадский район, Московской обл.
тел.: +7 (495) 545-57-65
факс: +7 (49654) 9-52-01

E-mail: info@radon.ru

